



Caractérisation optique et structurale de guides d'ondes non-linéaires GaAs/AlOx

Erwan Guillotel

► To cite this version:

Erwan Guillotel. Caractérisation optique et structurale de guides d'ondes non-linéaires GaAs/AlOx. Physique [physics]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2010. Français. NNT : . tel-00527196

HAL Id: tel-00527196

<https://theses.hal.science/tel-00527196>

Submitted on 18 Oct 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS DIDEROT - PARIS 7

LABORATOIRE MATÉRIAUX ET PHÉNOMÈNES QUANTIQUES

CNRS UMR 7162

THÈSE

présentée pour obtenir le diplôme de

Docteur en Sciences de l'Université Paris Diderot

par

Erwan GUILLOTTEL

Sujet :

**Caractérisation optique et structurale
de guides d'ondes non-linéaires GaAs/AlOx**

Soutenue le (5 février 2010) devant la commission d'examen composée de :

M.	Gilles PATRIARCHE	Président
Mme	Chantal FONTAINE	Rapporteur
M.	Marc DE MICHELI	Rapporteur
M.	Cyril LANGLOIS	Examineur
M.	Xavier MARCADET	Examineur
M.	Giuseppe LEO	Directeur de thèse

Remerciements

En dehors des laboratoires de recherches académiques, le chercheur est souvent perçu comme un vieux savant fou aux cheveux hirsutes, peu enclin à quitter ses livres et ses expériences et travaillant seul dans son coin. La réalité, à tout point de vue, est en générale, et fort heureusement, bien différente. Le travail de thèse n'échappe pas à cette réalité et les journées d'un "thésard" sont ponctuées d'interactions et de marques de soutiens d'un grand nombre de personnes qui l'entourent. Dans les lignes qui suivent je souhaite donc exprimer ma reconnaissance à toutes ces personnes qui m'ont permis d'avancer sur le difficile chemin de la thèse, de l'instant où je me suis jeter dedans à pieds joints jusqu'au moment où j'ai dû la défendre.

Mes premiers mots vont à mon directeur, Giuseppe Leo, qui en juin 2006 m'a donné envie d'apporter ma pierre à l'édifice du projet ambitieux de l'OPO intégré en GaAs/AlOx. Outre l'enthousiasme que tu m'as transmis, tu m'as donné le moyen matériel de participer à ce projet en obtenant une bourse de la région Ile-de-France. Je tiens donc à te remercier pour l'opportunité que tu m'as offerte en m'accueillant au sein de l'équipe DON.

Ce projet a été réalisé en collaboration étroite avec l'équipe MN2P, dirigée par Christian Ricolleau, qui a apporté son expertise en microscopie électronique en transmission. Merci à toi, Christian, de m'avoir permis de m'insérer dans ton équipe et d'avoir toujours été franc et honnête lors de nos discussions. Je veux aussi exprimer toute ma gratitude à Cyril Langlois qui m'a encadré au jour le jour. Merci Cyril pour avoir partagé avec moi ton savoir et ton amour de la MET, le tout dans une bonne humeur permanente. J'ai apprécié nos moult discussions, quelles aient été d'ordre scientifique ou personnel, au cours desquelles ta jovialité et tes qualités personnelles ont donné un visage humain à la recherche.

Je tiens aussi à remercier Mme Chantal Fontaine et MM. Marc de Micheli, Xavier Marcadet et Gilles Patriarche pour avoir accepté d'évaluer mon travail en rejoignant le jury de thèse.

Nombreuses sont les personnes qui ont collaboré à mon travail de recherche et à qui je souhaite exprimer ma gratitude. Merci à Christophe Manquest et Pascal Filloux pour leur temps passé en salle blanche à faire la "techno" et à caractériser au MEB les guides d'ondes. Merci à Bernadette Domengès du NXP-LaMIPS Caen et Sunsuke Asahina de JEOL Europe pour leur participation dans la recherche de la meilleure méthode de fabrication de lames

minces pour le MET. Merci à Isabelles Sagnes et Xavier Lafosse du LPN pour avoir mis à ma disposition leur expertise en conception et fabrication de miroirs haute réflectivité, et à Loïc Lanco pour l'énergie dépensée à établir des liens entre ses anciens et actuels collègues et pour le temps passé à faire de la techno quand les ingénieurs MPQ n'étaient plus à même de le faire. Merci à Patrick Lepert et Johannes Armani pour avoir toujours accepté, sans rechigner, de me fabriquer tout un tas de pièces mécaniques que l'on ne trouve pas dans le catalogue Thorlabs. J'ai aussi évidemment une pensée pour Anne Servouze, Françoise Beaud et Joëlle Mercier pour leur soutien sans faille à l'heure de préparer des bons de commande, de me fournir le matériel de base du chercheur (cahiers et stylos) et de retrouver le mystérieux rouleau pratique qui n'a de cesse de disparaître.

Je tiens aussi à exprimer ma sympathie à mes collègues, ceux qui m'ont, chaque jour de cette thèse, apporté leur soutien, leur avis, leurs remarques et leur amitié : Sara Ducci, Ivan Favero, Laetitia Doyennette et Vincent Berger de l'équipe DON; Emanuel Fort, Damien Alloyeau et Jaysen Nelayah de l'équipe MNN2P. Un grand merci à Xavier "take it eaaaaaaaaasy..." Caillet. Mec, tu n'ignores pas à quel point j'ai apprécié partager avec toi nos galères et nos bons moments en salle de manip', face à magic Matlab et en dehors du labo. Grazzie mille a te Marco Ravaro pour tout ce que tu m'as appris, pour les conseils que tu m'as prodigués même lorsque tu n'étais plus à MPQ et pour ta bonne humeur permanente. Grazzie anche a te Filippo Ghiglieno pour ton aide précieuse et ta sagesse. Je n'oublierai pas nos nombreuses discussions littéraires et tes conseils à l'heure de chercher du travail. Merci aussi à Mélanie "AlOx" le Dû, Elisa Baldit et Lou Ding, post-doc un temps chez DON, à la "vieille" génération des thésards MPQ : Luca, Alessio, Aurore... et à la nouvelle, à qui je souhaite bon courage pour les années à venir : Alberto, Marc, Alexandre, Adeline et Christophe.

Cette thèse doit aussi sa réussite à l'ensemble des "TAPAS" (thésards et autres post-doc, ATER et stagiaires) de MPQ avec lesquels j'ai pu décompresser lors des pauses cafés, des petits-dej', des parties de QPUC et des soirées pleines de bonne humeur (et pas que ça d'ailleurs!). Je pense entre autres à Simooooone, "Nicopédia", les Seb (Blanc et Removille), Ludivine, Pauline, Quentin, Simon, Carole et beaucoup d'autres encore.

Et puis il y a ceux d'avant : mon cher colloc' Sylvain, Ben, Matou, Chama, Sonia, Amaury et Amine "Kho". Toujours présents quand j'en avais besoin.

Merci aussi à mes parents qui ont cru en chacune de mes décisions dès l'instant où je suis parti à Paris. Merci aussi à ma sœur Soïzig pour m'avoir écouté et encouragé dans les moments un peu critiques.

Finalment j'aimerais remercier celle qui partage ma vie depuis plus de trois ans. Merci Carinyo per la teva presència, que s'ha tornat imprescindible al llarg d'aquests anys. Gracies per ser com ets, divertida, sensible i borde :) , i per donar-me tot el teu suport en els moments on patia molt. Espero que compartim molt més, sigui on sigui.

Table des matières

Introduction générale	1
1 Optique non linéaire en guide d'ondes	7
1.1 Concepts fondamentaux d'optique non-linéaire	7
1.1.1 Origine de la non-linéarité	7
1.1.2 Équation d'onde dans les milieux non-linéaires	11
1.1.3 L'exemple de la génération de second harmonique	12
1.1.4 Autres interactions	14
1.1.5 L'oscillation paramétrique optique	19
1.2 Interactions non-linéaires en guides d'ondes	22
1.2.1 Structures semi-conductrices guidantes	23
1.2.2 Conversion de fréquence en guide d'ondes	25
1.3 Techniques d'accord de phase	27
1.3.1 Accord de phase par biréfringence	28
1.3.2 Accord de phase modal	29
1.3.3 Quasi-accord de phase	30
1.3.4 Accords de phase par biréfringence de forme	31
1.4 Conclusion	34
2 Conception et réalisation de guides d'ondes GaAs-AlOx	35
2.1 Un design optimisé pour la conversion de fréquence	35
2.1.1 Structure	35
2.1.2 Performances attendues	39
2.2 Fabrication des guides GaAs/AlOx	42
2.2.1 De la croissance à la gravure	42
2.2.2 Oxydation sélective des guides d'ondes	48

2.3	Conclusion	56
3	Étude des couches d'AlOx par microscopie électronique en transmission	59
3.1	Fonctionnement du MET	60
3.1.1	Interactions électron-matière	61
3.1.2	Architecture d'un microscope électronique en transmission	64
3.2	Techniques de microscopie électronique mises en œuvre	68
3.2.1	L'imagerie conventionnelle	69
3.2.2	L'imagerie haute résolution	71
3.2.3	La spectroscopie de perte d'énergie des électrons	72
3.2.4	L'imagerie filtrée en énergie	74
3.2.5	La microscopie électronique en transmission à balayage en mode HAADF	75
3.3	Méthodes de préparation des lames minces	76
3.3.1	Mise en œuvre expérimentale	77
3.3.2	Résultats	83
3.3.3	Discussion	89
3.4	Résultats des observations MET	90
3.4.1	Caractérisation des interfaces GaAs/AlOx	90
3.4.2	Caractérisation chimique et structurale des effets de l'oxydation sélective	104
3.5	Conclusion	110
4	Vers un OPO intégré	113
4.1	Modélisation des pertes dues à la rugosité des interfaces	113
4.1.1	Description de la rugosité aux interfaces	114
4.1.2	Approximation simple pour des guides multicouches	117
4.1.3	Incertitudes sur les évaluations numériques	119
4.2	Mesure d'amplification paramétrique	123
4.2.1	Montage expérimental	123
4.2.2	Résultats	126
4.3	Recherche des paramètres d'oxydation optimale	129
4.3.1	Mesure des pertes de propagation en guide d'ondes	130

4.3.2	Modification des conditions d'oxydation	134
4.4	Miroirs haute réflectivité pour l'oscillation paramétrique	136
4.4.1	Conception et réalisation de miroirs intégrés aux guides d'ondes	140
4.4.2	Miroirs de Bragg distribués	142
4.4.3	Multicouches diélectriques	147
4.5	Conclusion	151
Conclusion générale		155
A Liste des symboles et abréviations		159
B Fiches de croissances		163
C Les lentilles magnétiques dans un microscope électronique		167
D Rappels sur la fonction de Green		169
Bibliographie		171
Liste des publications		184

Introduction générale

Il existe, dans les domaines spectraux du proche et moyen infrarouge¹ (NIR-MIR), une forte demande de sources cohérentes. Que ce soit dans le domaine des télécommunications, de la spectroscopie ou de la détection des gaz, cette demande n'est pas complètement satisfaite par les sources laser. Bien que celles-ci soient présentes sur presque tout ce domaine de fréquences, elles ne sont souvent pas accordables, ou leur plage d'émission spectrale est extrêmement réduite. Une autre catégorie de sources cohérentes permet, grâce à des matériaux optiquement non-linéaires, de faire de la conversion de fréquences à partir de sources existantes, et d'accéder ainsi à de nouveaux domaines de fréquences, avec une grande bande d'accordabilité. Ces sources reposent sur des matériaux dont la susceptibilité électrique possède un terme quadratique $\chi^{(2)}$. Dans ces matériaux $\chi^{(2)}$, l'interaction de deux champs E_1 et E_2 de fréquence respective ω_1 et ω_2 produit une polarisation non-linéaire, $P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2$, oscillant aux fréquences somme et différence. Cette polarisation est à son tour à l'origine de deux nouveaux champs de fréquence $\omega_1 + \omega_2$ et $|\omega_1 - \omega_2|$.

L'utilisation de matériaux non-linéaires permet par exemple de générer de la lumière verte et bleue dans le niobate de lithium (LiNbO_3) à partir d'une source infrarouge [1], ou de fabriquer des sources accordables sur plusieurs microns grâce aux oscillateurs paramétriques optiques (OPO). Toutefois, les OPO sont encombrants et mal adaptés à des exploitations hors des laboratoires de recherche. Idéalement il faudrait disposer de sources compactes, fonctionnant à température ambiante et accordables sur une large bande spectrale. Suivant la marche de la réduction de la taille des dispositifs opto-électroniques, la recherche en optique non-linéaire s'est orientée vers la conversion de fréquences dans des dispositifs intégrés. Dans des guides d'ondes de quelques microns carrés de section, on peut atteindre des densités de puissances optiques très élevées,

1. Ces gammes s'étendent de 0.8 à 20 μm environ.

sans la limite imposée par la diffraction dans les milieux massifs et, par conséquent, avec une efficacité de conversion beaucoup plus élevée. En optique non-linéaire guidée, deux matériaux tirent leur épingle du jeu : le LiNbO_3 , dont l'inconvénient est de ne pas être transparent au-delà de $5\ \mu\text{m}$, et l'arséniure de gallium (GaAs), dont le $\chi^{(2)}$ est six fois plus grand que celui du LiNbO_3 , et dont la plage de transparence va de 0.9 à $17\ \mu\text{m}$, mais qui est optiquement isotrope.

Cette thèse porte sur la réalisation et la caractérisation d'une source paramétrique guidée en GaAs . A partir d'un champ de pompe de longueur d'onde autour de $1\ \mu\text{m}$, cette source permet la génération paramétrique entre 1.2 et $2.4\ \mu\text{m}$ (bien que d'un point de vue théorique elle pourrait émettre au-delà, le signal expérimente une forte atténuation sur l'intervalle 2.5 - $4.2\ \mu\text{m}$, dont l'origine est attribuée à l'absorption de l' AlOx) [2]. Plus spécifiquement, à partir de cette génération paramétrique, nous visons à la réalisation d'un OPO, dont la puissance beaucoup plus importante permettrait de nombreuses applications. Une de ces applications, soutenue par les questions environnementales actuelles, concernerait la détection de polluants aérosols qui possèdent des pics d'absorption très fort dans le MIR.

La nature isotrope du GaAs nous conduit au problème de l'accord de phase que l'on peut schématiser de la manière suivante. En raison de la dispersion des matériaux, deux champs de fréquences différentes se propagent à des vitesses de phase différentes. Au bout d'une certaine distance, appelée longueur de cohérence, l'amplitude du (des) champ(s) généré(s) par interaction non-linéaire décroît au lieu de croître, car le processus de conversion de fréquence devient destructif. Un moyen de compenser la dispersion est de faire appel à des matériaux biréfringents qui ont la particularité de posséder un indice de réfraction différent selon l'orientation de la polarisation du champ. Malheureusement, le GaAs n'est pas biréfringent et ne peut bénéficier de cette technique.

Toutefois, d'autres méthodes d'accord de phase sont disponibles. L'une d'elles, dite quasi-accord de phase (QPM), se base sur l'inversion périodique du signe du $\chi^{(2)}$ du milieu de propagation pour remettre en phase la polarisation avec le champ à chaque longueur de cohérence, et conserver ainsi une interaction constructive. Dans le cas des guides d'ondes en GaAs , le QPM est difficile à mettre en œuvre car il repose sur des reprises d'épitaxie qui donnent lieu à des pertes optiques trop élevées.

En 1975, van der Ziel proposa une autre méthode d'accord de phase, basée sur la biréfringence de forme [3]. Elle repose sur la croissance alternée de couches de deux matériaux d'indices de réfraction différents. Un mode polarisé parallèlement (TE) ou

perpendiculairement (TM) aux couches, expérimente alors un indice de réfraction effectif différent en raison de conditions aux bords différentes. Cette technique est beaucoup moins difficile à mettre en œuvre que le QPM. Néanmoins, dans une structure où l'on alterne des couches de GaAs et d'AlGaAs, la biréfringence créée ne compense pas totalement la dispersion si l'on souhaite travailler dans le NIR [3]. En particulier, il est impossible d'accorder en phase une onde de pompe à $1\text{ }\mu\text{m}$ polarisée TM et un signal à $2\text{ }\mu\text{m}$ polarisé TE. Toutefois, au début des années 90 un groupe de l'Université d'Illinois a découvert comment former un oxyde d'aluminium stable dans le temps [4,5]. De plus, ce processus d'oxydation est sélectif car il permet de transformer les couches riches en Al en un oxyde d'aluminium (AlOx), dont l'indice de réfraction est beaucoup plus faible que celui de l'AlGaAs. Une équipe de *Thomson CSF* a alors repris l'idée de la biréfringence de forme et l'a appliquée à des guides d'ondes à base de GaAs dans lesquels on insère des couches d'AlOx [6]. La biréfringence de la structure est ainsi amplifiée et arrive à compenser sa dispersion, même dans le NIR. La première démonstration d'accord de phase dans des guides d'ondes GaAs/AlOx a alors été faite en 1997 [7]. Ces dix dernières années de nombreuses expériences de mélange à trois ondes ont été réalisées dans ce type de structure par l'équipe Dispositifs Optiques Non-linéaires d'abord au sein de *Thomson CSF*, puis du laboratoire *Matériaux et Phénomènes Quantiques* : génération de différence de fréquences [7], génération de fluorescence paramétrique [8,9] et génération de second harmonique [9,10]. En particulier l'efficacité du processus de fluorescence paramétrique dans un guide de 3 mm de long a été estimée à 1.5×10^{-6} ce qui, en comparaison avec les guides d'ondes LiNbO₃ est trois fois plus grand pour un guide sept fois plus court [11].

Malgré ces résultats encourageants, cette structure souffre de pertes de propagation importantes qui limitent ses performances. En 2002, des mesures de pertes ont montré que les pertes étaient dues à de la diffusion dues aux imperfections des guides [12]. L'essentiel des pertes étant une conséquence de l'oxydation, les efforts, au cours de cette thèse, ont été tournés vers la recherche de leur origine au niveau microscopique. En particulier nous avons souhaité vérifier si la rugosité des différentes interfaces de la structure augmentait lors de l'étape d'oxydation. En ce sens, cette thèse s'est articulée autour des équipes DON et MN2P du laboratoire MPQ ; la première ayant développé la structure paramétrique guidée en GaAs et la seconde disposant de moyens et du savoir-faire liés à la microscopie électronique en transmission, technique mise en œuvre pour la caractérisation de cette rugosité. Nous avons aussi travaillé à la réduction des

pertes de propagation *via* la recherche des conditions d'oxydation optimales. Enfin nous avons progressé vers la réalisation d'un oscillateur paramétrique optique intégré en caractérisant l'efficacité de conversion non-linéaire de notre dispositif et en modélisant différentes cavités résonnantes que nous avons ensuite fabriquées et testées.

Organisation du manuscrit

Dans le **chapitre 1** nous introduisons les concepts de base de l'optique non-linéaire. Le problème de l'accord de phase y est souligné et différentes méthodes pour le résoudre sont présentées. Dans le cas des guides d'ondes non-linéaires à base de GaAs, nous montrons que l'accord de phase par biréfringence de forme est la solution la plus efficace et la plus simple à mettre en œuvre, mais qu'elle doit recourir à l'utilisation de l'AlOx pour une émission dans le NIR-MIR.

Le **chapitre 2** est consacré à la conception et la fabrication de guides d'ondes à biréfringence de forme. Nous présentons les contraintes liées à la présence d'AlOx, dont il faut tenir compte pour concevoir un OPO pompé à une pompe de longueur d'onde autour de $1\ \mu\text{m}$, permettant la génération sur une large bande spectrale située dans le NIR-MIR. Nous exposons ensuite les différentes étapes technologiques nécessaires à la réalisation des guides d'ondes GaAs/AlOx en insistant sur les propriétés de l'AlOx.

Partant de l'hypothèse que l'étape d'oxydation, indispensable à l'accord de phase par biréfringence de forme, était susceptible de détériorer les interfaces du cœur des guides d'ondes, et par conséquent être à l'origine des pertes optiques, nous avons effectué un travail poussé de caractérisation des interfaces. Le **chapitre 3** est consacré à cette étude qui a été réalisée par microscopie électronique en transmission (MET). Après avoir résumé le mode de fonctionnement d'un MET et ses différents modes d'acquisition de données, nous présentons les résultats d'une étude comparative que nous avons faite pour identifier la méthode de préparation de lames minces la mieux adaptée à nos guides d'ondes. Ensuite nous exposons les résultats de nos différentes caractérisations par MET. Ils portent sur la quantification de la rugosité des interfaces avant et après oxydation, mais aussi sur l'identification des modifications chimiques des couches de GaAs et d'AlGaAs voisines des couches d'AlOx. Une caractérisation des effets de l'oxydation montre de plus que l'AlOx formé n'est pas homogène mais qu'il est constitué de grains polycristallins entourés d'oxyde amorphe, possiblement à

l'origine de diffusion supplémentaire.

Enfin, dans le **chapitre 4** nous nous focalisons sur les propriétés optiques de nos guides d'ondes. Tout d'abord, nous présentons les résultats de calculs des pertes de propagation basés sur les données expérimentales du chapitre 3, et confirmons que les pertes sont essentiellement dues à la rugosité des interfaces GaAs/AlOx. Nous exposons ensuite les résultats de la première mesure d'amplification paramétrique dans des guides d'ondes GaAs/AlOx. Cette mesure nous a permis de caractériser avec précision le coefficient de gain paramétrique de nos guides, paramètre important pour la réalisation d'une cavité résonnante. Un autre paramètre important pour la réalisation d'une telle cavité est le coefficient de pertes de propagation dans celle-ci. Nous avons donc recherché les conditions d'oxydation minimisant les pertes, en faisant des mesures de pertes systématiques dont nous présentons les résultats. Finalement, en tenant compte de ces éléments, basés à la fois sur une étude des matériaux et sur des caractérisations optiques, nous avons modélisé plusieurs cavités résonnantes dans le but de fabriquer le premier OPO intégré à base de GaAs.

Chapitre 1

Optique non linéaire en guide d'ondes

Ce chapitre a pour but de présenter les concepts de base de l'optique non-linéaire nécessaires à la compréhension du fonctionnement de notre source guidée en GaAs/AlOx. Dans une première partie nous expliquons l'origine de la non-linéarité optique, puis présentons les processus les plus courants lors de mélanges à trois ondes. Nous présentons ensuite le cas des guides d'ondes non-linéaires puis soulignons le problème de l'accord de phase et les différentes techniques pour l'obtenir.

1.1 Concepts fondamentaux d'optique non-linéaire

1.1.1 Origine de la non-linéarité

Tout matériau peut être décrit comme un ensemble de particules chargées. L'application d'un champ électrique tend à déplacer ces particules : les particules chargées positivement dans le sens du champ électrique, celles chargées négativement dans le sens opposé. Dans le cas des matériaux diélectriques, ces particules sont fortement liées mais conservent une certaine élasticité qui se traduit par un déplacement transitoire des charges par rapport à leur position d'origine. Dans un modèle classique, les noyaux étant beaucoup plus lourds que les électrons, on peut considérer avec une bonne approximation que seuls ces derniers se déplacent. Ces légers déplacements sont à l'origine de l'apparition de moments dipolaires dont la moyenne se traduit, à l'échelle macroscopique, par une polarisation du milieu. Cette polarisation induit elle-même un champ électrique qui se superpose au champ initial. Si le champ appliqué oscille (si on éclaire le matériau avec un laser par exemple) les électrons oscillent à la même fréquence for-

mant un ensemble de dipôles oscillants. Dans les matériaux non magnétiques l'effet du champ magnétique est beaucoup plus faible et peut être négligé.

La position d'un électron de masse m et de charge $-e$ sous l'effet d'un champ électrique $E(t)$ est solution de l'équation :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_r^2 x + (\xi^{(2)} x^2 + \xi^{(3)} x^3 + \dots) = \frac{-e}{m} E(t) \quad (1.1)$$

où ω_r est la fréquence de résonance de l'électron et $\Gamma/2$ son taux d'amortissement.

Considérons dans un premier temps la réponse harmonique, en négligeant les termes $\xi^{(2)} x^2 + \xi^{(3)} x^3 + \dots$, à une onde monochromatique de la forme :

$$E(t) = \frac{1}{2} \{E_0 \exp(-i\omega t) + c.c.\} \quad (1.2)$$

où ω est la fréquence de l'onde et $c.c.$ désigne le complexe conjugué.

En insérant 1.2 dans 1.1 et en considérant que $|\Delta| = |\omega - \omega_r| \ll \omega_r$ (approximation quasi-résonnante), on obtient :

$$x(t) = \frac{eE_0}{4m\omega_r} \frac{\exp(-i\omega t)}{\Delta + i\Gamma/2} + c.c. \quad (1.3)$$

La polarisation induite étant définie par $P = -Nex$, avec N la densité de dipôles par unité de volume, on note qu'elle varie comme le champ électrique. On reformule alors la polarisation en faisant intervenir la susceptibilité électrique χ :

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \chi \vec{E}(t) \quad (1.4)$$

avec ϵ_0 la permittivité diélectrique du vide. Dans le cas simple d'un champ électrique suffisamment faible, $\chi = \chi^{(1)}$ et la réponse est linéaire. Toutefois, dès que l'amplitude du champ devient importante (dans le cas d'un laser par exemple), l'écart à l'équilibre des électrons est plus important et la force de rappel devient non linéaire. Les termes anharmoniques $\xi^{(2)} x^2 + \xi^{(3)} x^3 + \dots$ doivent alors être pris en compte dans la résolution de l'équation 1.1. Comme l'illustre la figure 1.1, si la réponse à un faible champ est linéaire (a), ce n'est plus le cas pour un champ important (b), et une analyse spectrale de la polarisation fait apparaître, en dehors d'une composante de fréquence ω , des composantes de fréquence $2\omega, 3\omega, \dots$ et une composante de fréquence nulle. Des champs électriques de fréquences différentes de la fréquence du champ initial sont donc générés.

Il n'est plus possible de résoudre analytiquement l'équation du mouvement 1.1, mais

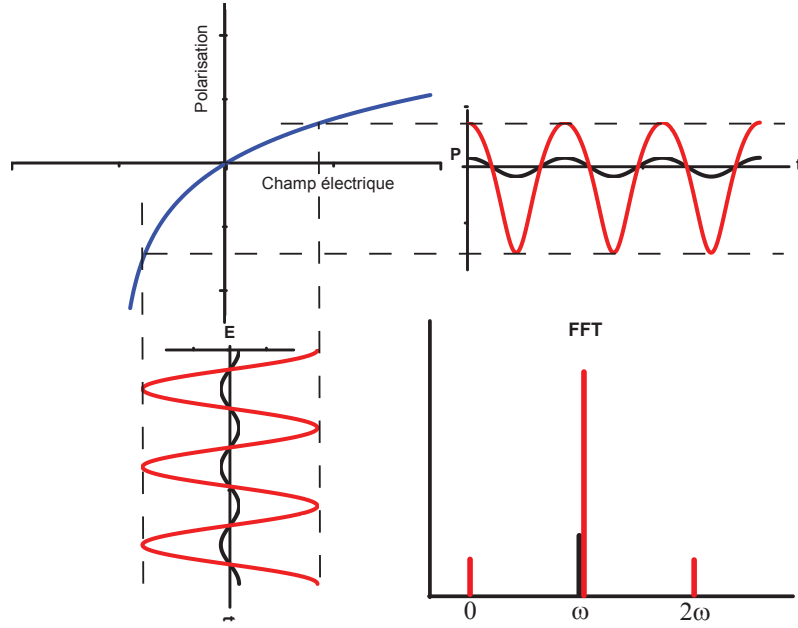


FIGURE 1.1 – Illustration de la relation non-linéaire entre la polarisation P et le champ électrique E . Pour un champ incident faible, P apparaît comme une réponse linéaire de E à la fréquence ω . Pour un champ plus fort, P se déforme et contient des harmoniques de ω .

dans la limite où les composantes anharmoniques sont petites devant la composante harmonique on montre que la polarisation peut s'écrire sous la forme d'une série de puissances de \vec{E} :

$$\vec{P}(t) = \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(1)}(t) \cdot \vec{E}(t)}_{\vec{P}^{(1)}} + \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(2)}(t) : \vec{E}(t)^2}_{\vec{P}^{(2)}} + \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(3)}(t) :: \vec{E}(t)^3}_{\vec{P}^{(3)}} + \dots \quad (1.5)$$

où $\chi^{(n)}$ est un tenseur d'ordre $(n+1)$ définissant l'ordre $n^{\text{ème}}$ de la susceptibilité dont la structure est caractéristique de la symétrie du matériau. Dans cette expression, nous avons isolé la partie linéaire $\vec{P}^{(L)}$, la seule à s'exprimer dans le cas de faibles champs, de la partie non-linéaire $\vec{P}^{(NL)}$.

Considérons maintenant un milieu non-linéaire en interaction avec un champ électrique \vec{E} , résultant de la somme discrète d'ondes planes monochromatiques \vec{E}_n de

vecteurs d'onde \vec{k}_n et de fréquences ω_n :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{n>0} \vec{E}_n(\vec{r}, t) = \sum_{n>0} \sum_{i=x,y,z} \frac{1}{2} E_i(\omega_n) \vec{e}_i \exp(-i\omega_n t + i\vec{k}_n \cdot \vec{r}) + c.c. \quad (1.6)$$

où \vec{e}_i est le vecteur unitaire pointant dans la direction de l'espace i , et $E_i(\omega_n)$ est l'amplitude de la composante de polarisation \vec{e}_i du champ électrique \vec{E}_n ². La non-linéarité du matériau se manifeste par l'existence d'une polarisation, fonction non-linéaire du champ électrique, qui admet un développement en puissances des composantes de ce champ. La polarisation apparaît donc comme une somme de composantes de Fourier spatiales et temporelles, et l'équation 1.5 devient :

$$\vec{P}(t) = \sum_m \sum_{i=x,y,z} P_i^{(p)}(\omega_m) \vec{e}_i \exp(-i\omega_m t + i\vec{\kappa}_m \cdot \vec{r}) \quad (1.7)$$

avec $P_i^{(p)}(\omega_m)$ la non-linéarité d'ordre p :

$$P_i^{(p)}(\omega_m) = \epsilon_0 \sum_{n_1, \dots, n_p} \sum_{i=x,y,z} \chi_{i,i_1, \dots, i_p}^{(p)}(-\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) E_{i_1}(\omega_{n_1}) \dots E_{i_p}(\omega_{n_p}) \quad (1.8)$$

où la somme est limitée aux indices n_j vérifiant :

$$\begin{cases} \omega_m &= \sum_{j=1}^p \omega_{n_j} \\ \vec{\kappa}_m &= \sum_{j=1}^p \vec{k}_{n_j} \end{cases}$$

Les susceptibilités non-linéaires $\chi^{(p)}$ possèdent une symétrie de permutation, de telle sorte que l'expression 1.8 est inchangée pour toute permutation du type :

$$\begin{cases} n_j &\leftrightarrow n_k \\ i_j &\leftrightarrow i_k \end{cases}$$

et si l'on permute les indices associés aux coordonnées cartésiennes de la même façon que l'on permute les fréquences des susceptibilités, on obtient une relation du type :

$$\chi_{i, \dots, i_j, \dots}^{(p)}(-\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_j}, \dots, \omega_{n_p}) = \chi_{i_j, \dots, i, \dots}^{(p)}(-\omega_{n_j}; \omega_{n_1}, \dots, \omega_m, \dots, \omega_{n_p}) \quad (1.9)$$

Par ailleurs, loin de toute fréquence de résonance du matériau, les susceptibilités non-linéaires sont indépendantes de la fréquence. D'après la symétrie de Kleinman [13], elles deviennent invariantes par permutation des indices de coordonnées cartésiennes sans changer les fréquences.

Maintenant que nous venons de voir l'origine de la non-linéarité des processus optiques dans les matériaux, tournons-nous vers la recherche de l'expression des champs électriques couplés dans ce type de processus.

2. A l'inverse du champ \vec{E}_n qui est réel, $E_i(\omega)$ est une quantité complexe.

1.1.2 Équation d'onde dans les milieux non-linéaires

Afin de décrire la propagation du champ électrique à travers le matériau, il est nécessaire de prendre en compte le couplage entre les ondes lumineuses et la polarisation induite par ces champs. En absence de charges, l'équation d'onde, pour le champ électrique dans un milieu diélectrique, isotrope et non magnétique, est issue des équations de Maxwell où la polarisation joue le rôle d'un terme source :

$$\nabla^2 \vec{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.10)$$

Pour les processus d'ordre 2 on peut réécrire la polarisation selon l'expression 1.5 : $\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \vec{P}^{(2)}$ et l'on obtient :

$$\nabla^2 \vec{E} = \frac{\epsilon}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2} \quad (1.11)$$

où le terme $\frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2}$ prend en compte le transfert d'énergie entre les champs à différentes fréquences, couplés par la non-linéarité.

Analysons ce processus en considérant trois ondes planes monochromatiques colinéaires de fréquences ω_1 , ω_2 et ω_3 avec $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (génération de fréquence somme (SFG)) :

$$\begin{cases} \vec{E}_1(\vec{k}, t) = \frac{1}{2} \{E_1(z) \vec{e}_1 \exp[i(k_1 z - \omega_1 t)] + c.c.\} \\ \vec{E}_2(\vec{k}, t) = \frac{1}{2} \{E_2(z) \vec{e}_2 \exp[i(k_2 z - \omega_2 t)] + c.c.\} \\ \vec{E}_3(\vec{k}, t) = \frac{1}{2} \{E_3(z) \vec{e}_3 \exp[i(k_3 z - \omega_3 t)] + c.c.\} \end{cases} \quad (1.12)$$

Les trois ondes échangeant de l'énergie au cours de la propagation selon z , nous avons, par rapport à l'équation 1.6, introduit la dépendance en z de leur amplitude. On peut toutefois se placer dans l'approximation de la fonction enveloppe, c'est à dire considérer que la variation de cette amplitude au cours de la propagation est très faible à l'échelle de la longueur d'onde optique :

$$\left| \frac{d^2 E_i(z)}{dz^2} \right| \ll \left| k_i \frac{dE_i(z)}{dz} \right| \quad (1.13)$$

Dans le cas de la somme de fréquence, la projection de $\vec{P}^{(2)}$ sur les axes $i=1,2,3$ donne :

$$P_i^{(2)}(\omega_3) = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (1.14)$$

En insérant les équations 1.12 et 1.14 dans 1.11, on obtient le système d'équations couplées décrivant la variation de l'amplitude des champs dans le cas de la SFG [14] :

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} = i \frac{\omega_1 d_{eff}}{n_1 c} E_2^* E_3 \exp(-i\Delta k z) \\ \frac{dE_2}{dz} = i \frac{\omega_2 d_{eff}}{n_2 c} E_3 E_1^* \exp(-i\Delta k z) \\ \frac{dE_3}{dz} = i \frac{\omega_3 d_{eff}}{n_3 c} E_1 E_2 \exp(i\Delta k z) \end{cases} \quad (1.15)$$

où $n_i = n(\omega_i)$, $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ est le désaccord de phase entre les trois ondes, et d_{eff} est le coefficient non-linéaire effectif donné par :

$$d_{eff} = \frac{1}{2} \vec{e}_3 \cdot \chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2) : \vec{e}_1 \vec{e}_2 \quad (1.16)$$

Si l'on s'intéresse maintenant au cas de la génération de fréquence différence (DFG), où l'on a $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$, la projection de $\vec{P}^{(2)}$ sur les axes $i=1,2,3$ donne :

$$P_i^{(2)}(\omega_3) = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, -\omega_2) E_j(\omega_1) E_k^*(\omega_2) \quad (1.17)$$

et l'on obtient le système d'équations couplées pour la DFG :

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} = i \frac{\omega_1 d_{eff}}{n_1 c} E_2 E_3 \exp(i\Delta k z) \\ \frac{dE_2}{dz} = i \frac{\omega_2 d_{eff}}{n_2 c} E_3^* E_1 \exp(-i\Delta k z) \\ \frac{dE_3}{dz} = i \frac{\omega_3 d_{eff}}{n_3 c} E_1 E_2^* \exp(-i\Delta k z) \end{cases} \quad (1.18)$$

où le désaccord de phase vaut cette fois $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$.

Maintenant que nous disposons des systèmes d'équations couplées pour les processus de SFG et de DFG, nous allons les résoudre.

1.1.3 L'exemple de la génération de second harmonique

On s'intéresse à un milieu non-linéaire de longueur L , caractérisé par une susceptibilité du second ordre $\chi^{(2)}$, auquel on applique une onde plane intense, que l'on appelle pompe, de fréquence $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et d'amplitude $E(\omega)$ se propageant selon l'axe Oz . Le champ électrique présent initialement est donc de la forme :

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \{ E(\omega) \exp[i(k_\omega z - \omega t)] + c.c. \} \quad (1.19)$$

où $k_\omega = n(\omega)\omega/c$ est le vecteur d'onde de la pompe dans le milieu non-linéaire d'indice de réfraction $n(\omega)$ à la fréquence ω . Le milieu peut alors exhiber une polarisation non-linéaire contenant deux composantes de Fourier : l'une de fréquence nulle, l'autre de fréquence $\omega_3 = 2\omega$,

$$P^{(2)}(2\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) E(\omega)^2 \quad (1.20)$$

Cette polarisation rayonne à son tour une onde lumineuse, à la fréquence double de celle de la pompe, à l'origine de la génération de second harmonique.

Pour la SHG de type I³, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable et de la symétrie de Kleinman [15], le système d'équations couplées devient :

$$\begin{cases} \frac{dE_\omega(z)}{dz} = i \frac{\omega}{n_\omega c} d_{eff} E_\omega^*(z) E_{2\omega}(z) \exp(-i\Delta k z) \\ \frac{dE_{2\omega}(z)}{dz} = i \frac{\omega}{n_{2\omega} c} d_{eff} E_\omega^2(z) \exp(i\Delta k z) \end{cases} \quad (1.21)$$

où $E_{a \times \omega}(z) \equiv E(z, a \times \omega)$, $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_\omega$ est le désaccord de phase, et $d_{eff} = \frac{1}{2} \vec{e}_3 \cdot \chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) : \vec{e}_1 \vec{e}_2$ est le coefficient non-linéaire effectif. Si l'on considère que l'amplitude de la pompe ne varie pas au cours de la propagation, la puissance du second harmonique, $P_{2\omega}(L)$, après une distance L , est générée avec l'efficacité de conversion :

$$\eta = \frac{P_{2\omega}(L)}{P_\omega(0)} = \eta^0 \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (1.22)$$

où η^0 est donné par :

$$\eta^0 = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2 L^2 P_\omega / \mathcal{A}}{n_\omega^2 n_{2\omega} c \epsilon_0 \lambda_\omega^2} \quad (1.23)$$

avec \mathcal{A} , l'aire du faisceau de pompe.

Comme on peut le remarquer dans l'expression 1.22, l'efficacité de conversion de la génération de second harmonique varie avec le sinc^2 du désaccord de phase entre la

3. L'accord de phase peut être obtenu selon deux schémas distincts dits de type I ou de type II et caractérisés par la polarisation des différentes champs électriques en interaction. Si l'on considère les champs $E_1(\omega_1)$, $E_2(\omega_2)$ et $E_3(\omega_3)$ tels que $\omega_3 = 2\omega_1 = 2\omega_2$ (SHG) ou $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (SFG) ou $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ (DFG) alors, dans le cas de l'accord de phase de type I, E_1 et E_2 ont la même polarisation alors que dans le cas d'accord de phase de type II leur polarisations sont orthogonales.

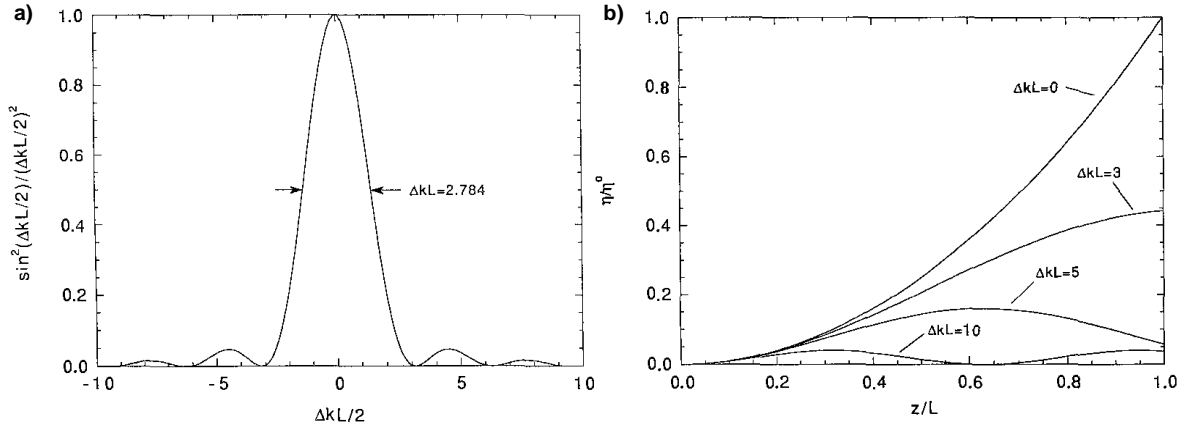


FIGURE 1.2 – a) Effets du désaccord de phase entre la pompe et le second harmonique. b) Efficacité normalisée au cours de la propagation (d'après [16]).

pompe et le second harmonique. La figure 1.2a illustre l'importance d'un bon accord de phase entre les deux champs. Au cours de la propagation, l'impact du désaccord de phase est très sévère, comme on peut le voir sur la figure 1.2b. À l'entrée du milieu non-linéaire, une partie de l'énergie de pompe est transférée au second harmonique. Toutefois, les deux ondes ayant des vitesses de phase différentes, le transfert d'énergie devient moins efficace au cours de la propagation et après une distance $L_c = \pi/\Delta k$, appelée longueur de cohérence, l'énergie est transférée du second harmonique vers la pompe. En raison de la dispersion, la condition d'accord de phase dans les milieux optiques n'est, en général, pas satisfaite. Il existe différentes techniques pour obtenir l'accord de phase, que l'on présentera en section 1.3.

1.1.4 Autres interactions

Parmi les autres processus d'interactions du second ordre, nous pouvons mentionner ceux intervenant lorsque qu'un matériau non-linéaire est éclairé par deux faisceaux monochromatiques de fréquences ω_1 et ω_2 , colinéaires et de même polarisation. Dans ce cas le champ total dans le matériau peut s'écrire :

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \{ E_1 \exp [i (k_1 z - \omega_1 t)] + E_2 \exp [i (k_2 z - \omega_2 t)] + c.c. \} \quad (1.24)$$

où $k_i = n_i \omega_i / c$ est le vecteur d'onde du faisceau à la fréquence ω_i , dont l'indice optique est n_i ($i=1$ ou 2). Peuvent alors intervenir :

- le doublage de fréquence décrit précédemment : $\omega = 2\omega_i$ et $\chi^{(2)}$ de la forme $\chi^{(2)}(-2\omega_i; \omega_i, \omega_i)$ avec $i=1$ ou 2 ,
- la somme de fréquences : $\omega = \omega_1 + \omega_2$ et $\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$,
- la différence de fréquences : $\omega = \omega_1 - \omega_2$ et $\chi^{(2)}(-\omega_1 + \omega_2; \omega_1, -\omega_2)$.

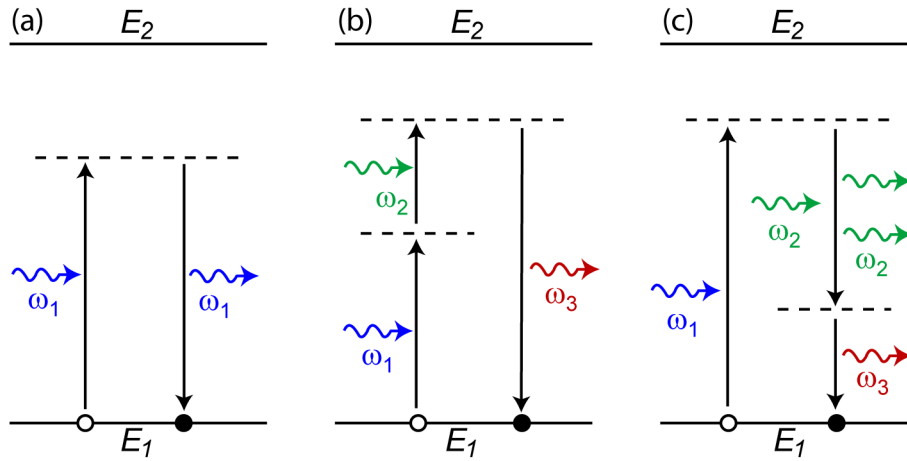


FIGURE 1.3 – Transitions virtuelles dans un système à deux niveaux : a) transmission, b) SFG, c) DFG (un photon incident de fréquence ω_2 provoque l'émission d'un autre photon à la même fréquence) ou fluorescence paramétrique (un photon de fréquence ω_2 est émis spontanément).

Bien que les équations couplées fournissent une bonne description des processus du second ordre, le caractère formel de cette approche illustre peu leur contenu physique. Une description quantique de ces phénomènes, très parlante, s'appuie sur le concept de transition virtuelle et d'états intermédiaires introduits par Shen [17]. Contrairement aux transitions réelles, comme l'émission stimulée, l'émission spontanée ou l'absorption, qui font intervenir une interaction résonnante du champ électrique avec le milieu, les transitions virtuelles ont lieu entre des niveaux d'énergie aux temps de vie ultracourts, où la densité d'état est nulle. La figure 1.3 montre quatre exemples de processus faisant intervenir des transitions virtuelles :

- Un photon de fréquence ω , avec $\hbar\omega < E_2 - E_1$, excite le système dans un état qui n'est pas un état propre et est réémis aussitôt. Le temps de vie du niveau virtuel, très court mais non nul, est à l'origine du ralentissement de la lumière dans un

milieu matériel⁴ (figure 1.3a).

- Dans le cas de la somme de fréquence (figure 1.3b), un premier photon d'énergie $\hbar\omega_1$ excite le système dans un premier niveau virtuel, puis un second photon d'énergie $\hbar\omega_2$ excite le système vers un second niveau virtuel. Lors du retour à l'équilibre, un photon de fréquence $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ est émis⁵. Dans le cas particulier où deux photons de même fréquence ω excitent le système vers un niveau virtuel, le photon émis possède une fréquence double de celle de ces photons, soit 2ω : c'est le phénomène de génération de second harmonique.
- Dans le cas de la différence de fréquence (figure 1.3c), après l'absorption d'un photon de fréquence ω_1 , un second photon de fréquence $\omega_2 < \omega_1$ induit l'émission d'un photon de même fréquence en faisant redescendre le système vers un niveau virtuel plus bas, puis un troisième photon de fréquence $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ est émis lors du retour du système vers le niveau fondamental. On remarque que cette interaction est à la fois une génération de fréquence et un phénomène d'amplification. Dans le cas où le champ $E(\omega_3)$ est initialement nul, on appelle les champs aux fréquences ω_1 , ω_2 et ω_3 , faisceau pompe, signal et complémentaire, respectivement.
- Il est aussi possible d'obtenir une paire de photons signal et complémentaire en l'absence de faisceau source à la fréquence ω_2 (figure 1.3c). Ce phénomène qui ne peut être décrit de façon classique, est appelé fluorescence paramétrique (PF) et découle de l'interaction de la pompe avec le bruit quantique via la non-linéarité de second ordre.

Somme et différence de fréquence

Il est possible d'évaluer l'efficacité de conversion des processus de SFG et DFG si l'on néglige la variation d'amplitude des deux ondes incidentes au cours de la propagation (faible efficacité de conversion). Pour cela on intègre tout d'abord les systèmes d'équations couplées 1.14 et 1.17 le long de la propagation. Après la propagation sur une longueur L dans le milieu non-linéaire, l'amplitude du champ E_3 produit par SFG

4. Macroscopiquement, ce retard est associé à l'indice de réfraction du matériau dans le cadre de l'électrodynamique classique.

5. Seuls des flux de photons suffisamment intenses permettent à la seconde transition d'avoir lieu dans le temps de vie du premier niveau virtuel.

vaut :

$$|E_3|^2 = \left(\frac{\omega_3 d_{eff}}{cn_3} \right)^2 |E_1|^2 |E_2|^2 L^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (1.25)$$

L'efficacité de conversion η s'obtient en intégrant les intensités $I_i = 2\epsilon_0 n_i c |E_i|^2$ sur la section \mathcal{A} des trois faisceaux :

$$\eta = \frac{P_3}{P_1 P_2} = \eta_{norm} L^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) [\text{W}^{-1}] \quad (1.26)$$

où P_i est la puissance à la fréquence ω_i , et η_{norm} est l'efficacité de conversion à l'accord de phase $\Delta k = 0$, normalisée à la longueur d'interaction :

$$\eta_{norm} = \frac{1}{\mathcal{A}} \frac{8\pi^2 d_{eff}^2}{n_1 n_2 n_3 c \epsilon_0 \lambda_3^2} [\text{W}^{-1} \text{cm}^{-2}] \quad (1.27)$$

avec $\lambda_3 = 2\pi c/\omega_3$. De la même façon, on obtient une expression similaire de l'efficacité de conversion du processus de DFG.

Amplification et fluorescence paramétrique

Lorsqu'une onde de pompe intense de fréquence ω_p et une onde de signal de fréquence $\omega_s < \omega_p$ traversent un milieu non-linéaire, il y a amplification du signal et génération d'une onde complémentaire. Toutefois, la recherche des solutions du système d'équations couplées 1.18 se fait en posant des conditions initiales différentes de celles de la DFG, à savoir :

$$\begin{cases} E_c(0) = 0 \\ |E_p(0)| \approx |E_p(z)| \\ |E_s(0)| \ll |E_p(0)| \end{cases} \quad (1.28)$$

Après une interaction sur une distance L , on obtient pour les champs signal et complémentaire :

$$\begin{cases} |E_s(L)|^2 = |E_s(0)|^2 \cosh^2(gL) \\ |E_c(L)|^2 = |E_s(0)|^2 \sinh^2(gL) \end{cases} \quad (1.29)$$

où g est le coefficient de gain paramétrique défini comme suit :

$$(gL)^2 = \frac{P_p}{2n_p \mathcal{A}} \frac{16\pi^2 d_{eff}^2 L}{\epsilon_0 c n_s n_c \lambda_s \lambda_c} \quad (1.30)$$

Il est courant de réexprimer ce coefficient en fonction d'un facteur de dégénérescence, δ , défini comme suit :

$$\begin{cases} \omega_s = \frac{1}{2}\omega_p(1 + \delta) \\ \omega_c = \frac{1}{2}\omega_p(1 - \delta) \end{cases}$$

En définissant $\lambda_0 = 2\lambda_p$, la longueur d'onde du signal et du complémentaire à la dégénérescence, et $n_0 = n(\lambda_0) \approx n_s \approx n_c$ on obtient l'expression suivante pour le coefficient de gain paramétrique :

$$(gL)^2 = \frac{P_p}{2n_p\mathcal{A}} \frac{16\pi^2 d_{eff}^2 L^2}{\epsilon_0 c n_0^2 \lambda_0^2} (1 - \delta^2) \quad (1.31)$$

Ce coefficient est maximum à la dégénérescence ($\delta = 0$), et diminue à mesure que l'on s'en éloigne ($\delta \rightarrow 1$). On exprime l'amplification du signal à travers le gain paramétrique G , défini en fonction du désaccord de phase par [16] :

$$\frac{P_s(L)}{P_s(0)} = 1 + G = 1 + (gL)^2 \frac{\sinh^2(\sqrt{(gL)^2 - (\Delta k L/2)^2})}{(gL)^2 - (\Delta k L/2)^2} \quad (1.32)$$

Dans la plupart des cas, on peut se placer dans le régime de faible gain où $(gL)^2 \ll (\Delta k L/2)^2$, et l'on réexprime G comme :

$$G \simeq (gL)^2 \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (1.33)$$

A l'accord de phase parfait ($\Delta k = 0$), $G \simeq (gL)^2$. Enfin, on relie la puissance du complémentaire généré au gain paramétrique à travers l'expression :

$$\frac{P_c(L)}{P_s(0)} = \frac{\omega_c}{\omega_s} G \quad (1.34)$$

Il existe aussi un processus, appelé fluorescence paramétrique, au cours duquel un photon pompe de fréquence ω_p est spontanément converti en une paire de photons d'énergie plus faible. La fréquence ω_s du photon signal et ω_c du photon complémentaire doivent respecter la conservation de l'énergie, d'où $\omega_p = \omega_s + \omega_c$. Ce phénomène est un effet strictement quantique, prédit dès 1961 [18], mais que l'on traite de manière semi-classique en assimilant la pompe à un champ classique⁶ et en quantifiant

6. Ceci est possible en tenant compte que la pompe est un champ intense, contenant donc un très grand nombre de photons.

les champs signal et complémentaire [17, 19].

On interprète ce phénomène par l'existence de la fluctuation du vide que l'on peut assimiler à la présence d'un demi photon dans chacun des modes signal et complémentaire ou d'un photon dans l'un de ces deux modes. Au voisinage de chaque fréquence ω_s (respectivement ω_c ⁷) il existe un nombre fini de modes de bruit quantique agissant comme signal d'entrée "effective" de signal (resp. de complémentaire). Ces modes interagissent avec la pompe, donnant lieu à de la fluorescence paramétrique pouvant être perçue comme une génération d'un signal et d'un complémentaire (à travers la DFG) et d'une amplification du signal (resp. du complémentaire) (à travers l'amplification paramétrique à la fréquence ω_s (resp. ω_c)). On détermine la puissance du signal d'entrée de l'expression 1.34, pour des fréquences comprises dans une bande $\delta\omega_s$, en plaçant un quantum d'énergie dans chaque mode inclus dans cette bande, divisé par le temps de transition τ , et l'on obtient :

$$dP_s(0) = \hbar\omega_s \frac{\Delta N_s}{\tau} = \frac{\hbar\omega_s}{2\pi} d\omega_s \quad (1.35)$$

avec $\Delta N_s = n_s \Delta\omega_s L / 2\pi c$ et $\tau = n_s L / c$ [20, 21]. On obtient, dans le régime de faible gain, la puissance de sortie du complémentaire, en intégrant dP_c à l'aide des expressions 1.33 et 1.34 :

$$P_c(L) = (gL)^2 \frac{\omega_c}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) d\omega_s \quad (1.36)$$

Cette dernière expression, proportionnelle à la puissance de pompe, est strictement la même (en inversant les indices s et c) si l'on considère le bruit quantique comme un complémentaire "effectif".

1.1.5 L'oscillation paramétrique optique

Le gain d'amplification paramétrique est souvent faible, même pour de fortes intensités de pompe. Une manière d'augmenter ce gain est de placer un milieu non-linéaire dans un résonateur constitué, par exemple, de deux miroirs. Ce faisant, si le gain paramétrique compense les pertes optiques du dispositif, il y a oscillation du signal. Dans un tel dispositif, appelé oscillateur paramétrique optique (OPO), signal et complémentaire sont créés par fluorescence paramétrique, et leurs puissances augmentent rapidement

7. en raison de la symétrie du processus

lorsque le seuil d'oscillation est dépassé. Les champs doivent toujours respecter la condition d'accord de phase : conservation du moment et de l'énergie. Pour une propagation colinéaire des trois champs cela implique

$$\omega_p[n(\omega_p) - n(\omega_p - \omega_s)] = \omega_s[n(\omega_s) - n(\omega_p - \omega_s)] \quad (1.37)$$

Il est donc possible d'accorder la longueur d'onde d'un OPO, en contrôlant les indices de réfraction. Cela peut se faire, par exemple, en modifiant la température d'accord de phase ou la longueur d'onde de la pompe. Puisque les longueurs d'onde du signal et du complémentaire ne dépendent pas d'une résonance du milieu non-linéaire mais de la conservation de l'énergie et du moment, un OPO peut émettre sur une très large bande spectrale, limitée le plus souvent par la bande de réflectivité des miroirs, ou la transparence du milieu. La largeur spectrale du signal et du complémentaire est contrôlée par la bande du gain paramétrique, la largeur spectrale de la pompe, l'intervalle spectral libre (*ISL*) et la finesse (*F*) de la cavité⁸.

Ce dispositif existe sous différentes configurations, parmi lesquelles on trouve l'OPO simplement résonnant (SROPO) et l'OPO doublement résonnant (DROPO). Nous les avons schématisées sur la figure 1.4. Dans le cas du SROPO, la réflectivité des miroirs d'entrée et de sortie est quasi-nulle pour la pompe et le complémentaire ($R_p \approx R_c \approx 0$) mais est très élevée pour le signal ($R_s \approx 1$). Dans le cas du DROPO, la réflectivité est aussi très élevée pour le complémentaire ($R_c \approx 1$)⁹.

L'OPO peut être assimilé à un laser dans lequel les émissions spontanée et stimulée sont remplacées par la fluorescence paramétrique et l'amplification paramétrique respectivement. Le gain au seuil g_{th} est atteint lorsque le signal et le complémentaire sont tous deux résonnants, et que l'accord de phase est respecté ($\Delta k = 0$). En égalisant le gain sur un aller et les pertes sur un aller/retour on montre que le gain au seuil, dans un SROPO de longueur L , et dans le régime faible gain, vaut :

$$(g_{th}L)^2 \simeq 2[1 - R_s \exp(-\alpha_s L)] \quad (1.38)$$

8. L'*ISL* d'une cavité de longueur L est l'écart en fréquence entre deux modes longitudinaux successifs, et est défini par $ISL = c/2nL$. La finesse est définie en fonction de la largeur spectrale de ces modes $\Delta\omega$: $F = ISL/\Delta\omega$

9. Contrairement aux lasers, le gain est unidirectionnel puisque l'accord de phase impose la conservation du moment. Le signal et le complémentaire sont amplifiés uniquement dans la direction de propagation de la pompe. Il existe toutefois des configurations, dites à double passage (de la pompe), où le miroir de sortie réfléchit une partie de la pompe pour permettre l'amplification à l'aller et au retour.

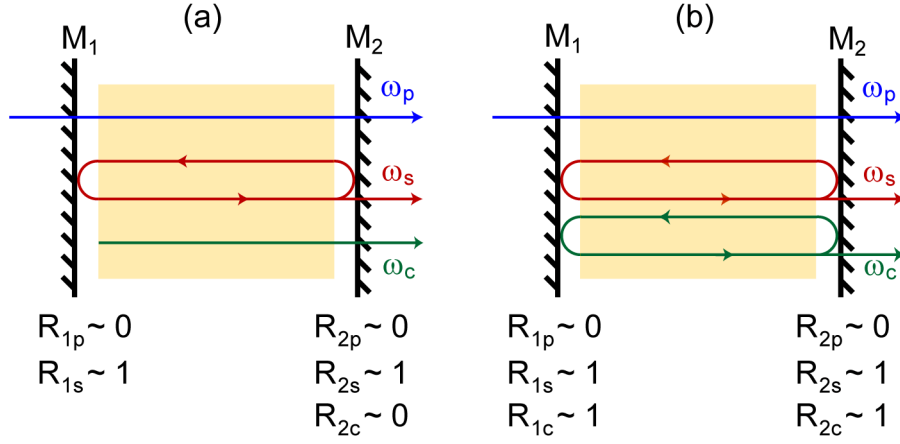


FIGURE 1.4 – Schématisation d'un OPO simplement (a) et doublement (b) résonnant.

où α_s désigne les pertes associées au signal. De la même façon on trouve pour le gain au seuil dans un DROPO une valeur plus faible que dans un SROPO, en raison d'une réflexion du signal *et* du complémentaire :

$$(g_{th}L)^2 \simeq [1 - R_s \exp(-\alpha_s L)][1 - R_c \exp(-\alpha_c L)] \quad (1.39)$$

où α_c désigne les pertes associées au complémentaire.

Dans la bande de gain paramétrique, les fréquences accessibles par le signal et le complémentaire correspondent à celles des modes longitudinaux de la cavité : $\omega_{s,c} = m_{s,c}\pi c/L_{s,c}$ où $m_{s,c}$ est un entier et $L_{s,c}$ est la longueur optique à la fréquence $\omega_{s,c}$. Les modes qui oscillent doivent respecter la conservation de l'énergie ($\omega_p = \omega_s + \omega_c$) tout en minimisant le désaccord de phase ($\Delta k = k_p - k_s - k_c$) et donc en expérimentant le gain maximum. L'ensemble des fréquences possibles d'émission constitue une contrainte plus forte pour les DROPOs (deux conditions) que pour les SROPOs (une seule condition). Ceci provoque une plus grande instabilité des DROPOs par rapport au SROPOs. En effet, un changement de la longueur de la cavité, induit par une variation de température ou des vibrations acoustiques par exemple, décale les fréquences de résonance de la cavité (elles s'éloignent ou se rapprochent). Puisque ce décalage se fait de la même façon pour le signal et le complémentaire, la conservation de l'énergie n'est plus respectée. Toutefois, comme le montre la figure 1.5, il existe d'autres modes de cavité qui peuvent satisfaire à cette règle. Ainsi, avec une fluctuation de la longueur

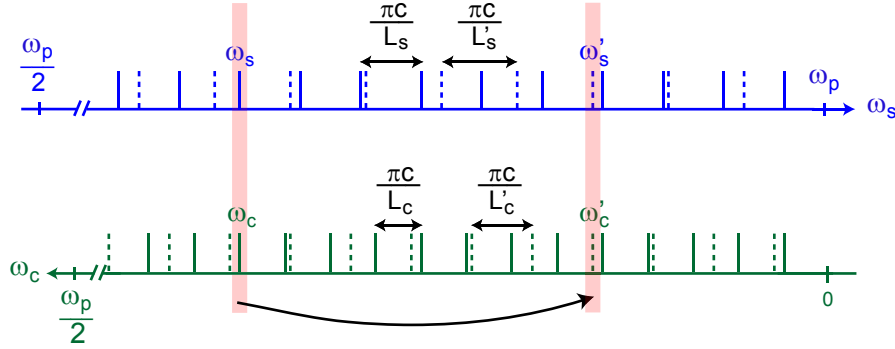


FIGURE 1.5 – Instabilités dans un DROPO : les modes longitudinaux de la cavité de fréquences ω_s et ω_c minimisent le désaccord de phase. Si la cavité est instable (modification des longueurs optiques), il peut y avoir des sauts de modes de sorte que la paire signal/complémentaire de fréquence ω'_s et ω'_c minimise le seuil d'oscillation paramétrique. (illustration d'après [16]).

de la cavité, de nouveaux modes oscillant dans l'OPO, parfois éloignés des modes de départ, apparaissent et bénéficient d'un gain maximum. Pour cette raison, le SROPO est souvent préféré au DROPO, malgré un gain de seuil plus élevé.

1.2 Interactions non-linéaires en guides d'ondes

Nous avons vu précédemment que deux conditions doivent être satisfaites pour obtenir une conversion de fréquence efficace. Tout d'abord, les intensités mises en jeu doivent être importantes, ce qui peut se obtenir en focalisant fortement un faisceau laser. Ensuite l'interaction doit se faire sur une longue distance, ce que l'on peut faire en collimatant ce même faisceau. On voit donc que les milieux massifs ne sont pas les meilleurs supports, puisqu'on n'y peut satisfaire les deux critères à la fois. Dans les guides d'ondes optiques, en revanche, les modes interagissant peuvent être très fortement confinés, et se propager sur de grandes distances, ce qui en fait de bons supports pour l'optique non-linéaire [22, 23]. Nous présentons dans cette partie les gui-

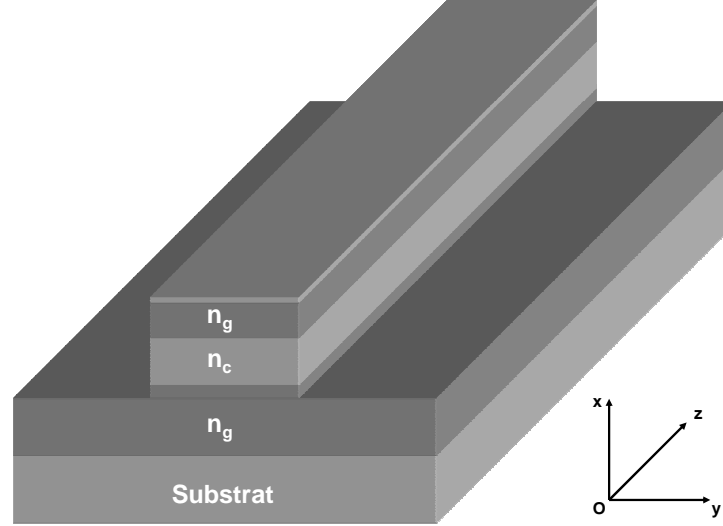


FIGURE 1.6 – Représentation schématique d'un guide d'ondes : dans la direction verticale le confinement est assuré par la présence de couches confinantes dont l'indice de réfraction, n_g , est plus faible que l'indice du cœur, n_c ; latéralement c'est la présence de l'air, $n = 1 < n_c$ qui assure le confinement.

des d'ondes semi-conducteurs et les changements concernant les résultats entrevus en section 1.1

1.2.1 Structures semi-conductrices guidantes

Les guides d'ondes optiques sont des structures permettant le confinement de modes électromagnétiques dans les dimensions transverses, et leur propagation dans la direction longitudinale. Ceci est possible si, comme schématisé sur la figure 1.6, une couche guidante, d'indice n_g et d'épaisseur de l'ordre de la longueur d'onde, est entourée par deux couches confinantes d'indice $n_c < n_g$. La lumière est confinée dans la couche d'indice le plus grand grâce au phénomène de réflexion totale interne. Sa propagation le long du guide est caractérisée par un indice "effectif", n_{eff} , de sorte que $n_c < n_{eff} < n_g$. Dans la direction latérale, le confinement est assuré par une variation de l'indice, qui peut être réalisée en gravant un ruban. Le guide peut être vu comme la juxtaposition de trois régions d'épaisseur différente. Selon la profondeur de gravure, le mode perçoit

une perturbation de l'indice (auquel cas on peut traiter le problème de propagation de l'onde de façon 1D) ou bien la différence d'indice est importante et un traitement du problème à 2 dimensions s'impose.

Les modes se propageant, dits modes guidés, sont en nombre discret à une fréquence donnée [24]. Leur recherche passe par la résolution des équations de Maxwell qui s'écrivent, dans le cas d'une onde monochromatique de fréquence ω dans le vide

$$\nabla \times \vec{E} = -i\omega\mu\vec{H} \quad \text{et} \quad \nabla \times \vec{H} = i\omega\epsilon_0 n^2 \vec{E}$$

où n est l'indice de réfraction à la fréquence ω . Si l'on considère un guide plan symétrique composé d'une couche guidante d'indice n_g , comprise entre $x = -d$ et $x = +d$, entourée par deux couches confinantes d'indice $n_c < n_g$, $n(x)$ vaut n_g si $|x| < d$ et n_c sinon. En combinant ces deux équations on obtient l'équation d'onde

$$\nabla^2 \vec{E} + k_0^2 n^2 \vec{E} = 0$$

avec $k_0 = \omega/c$. Si l'onde se propage selon la direction z on peut l'écrire sous la forme

$$E(x, t) = E_m(x) \exp[i(\beta z - \omega t)]$$

où β est la composante selon z du vecteur d'onde, aussi appelée constante de propagation, et $E_m(x)$ sont les champs électriques associés aux modes guidés, avec $m=0, 1, 2, \dots$. L'équation d'onde s'écrit alors

$$\left[\frac{d^2}{dx^2} + k_0^2 n^2 - \beta^2 \right] \vec{E}_m(x) = 0$$

Cette dernière équation est une équation aux valeurs propres β . Les solutions se classent en modes TE ou TM, selon que le champ électrique ou magnétique est orthogonal à la direction de propagation :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{e}_{TE} = e_y \vec{y}_0 \\ \vec{h}_{TE} = h_x \vec{x}_0 + h_z \vec{z}_0 \\ \vec{e}_{TM} = e_x \vec{x}_0 + e_z \vec{z}_0 \\ \vec{h}_{TM} = h_y \vec{y}_0 \end{array} \right. \quad (1.40)$$

Chaque mode est caractérisé par :

- un indice effectif qui détermine sa vitesse de phase.

– une distribution spatiale transverse $\phi_m(x)$ présentant m zéros le long de l'axe Ox . Dans un guide ruban, le champ associé à un mode guidé 2D peut s'exprimer de la façon suivante :

$$E(x, y, t) = E_0 \phi_{m,n}(x, y) \exp[i(\beta z - \omega t)] \quad (1.41)$$

où $\beta = n_{eff}\omega/c$ est la constante de propagation du mode, E_0 est l'amplitude complexe et $\phi_{m,n}(x, y)$ est la distribution modale du champ pour laquelle on applique la normalisation suivante :

$$\int \phi_{m,n}^2(x, y) dx dy = 1 \quad (1.42)$$

Prenons maintenant en considération des guides GaAs/Al_xGa_{1-x}As que l'on fait croître par épitaxie sur des substrats de GaAs. La croissance permet de varier la concentration en Al de $x = 0$ à $x = 1$. On voit sur la figure 1.7 que l'on peut faire varier l'indice de réfraction de chacune des couches constituant les guides, et ainsi finement définir l'indice effectif des modes guidés. La ligne verticale représente le seuil d'absorption du GaAs : au-delà de l'énergie de la bande interdite le matériau devient absorbant. Notons aussi que le substrat étant en GaAs, matériau ayant l'indice de réfraction le plus fort, les modes sont susceptibles de fuir vers le substrat. Pour éviter ce désagrément il faut insérer une couche confinante suffisamment épaisse pour bien repousser le mode dans le cœur guidant (voir figure 1.8).

1.2.2 Conversion de fréquence en guide d'ondes

Par rapport au traitement en ondes planes, effectué en section 1.1.2, la recherche des expressions de l'efficacité de conversion normalisée prend en compte la distribution spatiale des modes interagissant. Considérons trois modes décrits par l'expression 1.41, pour lesquels on admet que E_0 est une fonction lentement variable au cours de la propagation selon (Oz) . Le recouvrement spatial des distributions $\phi_1(x, y)$, $\phi_2(x, y)$ et $\phi_3(x, y)$, et du coefficient non-linéaire $d_{eff}(x, y)$, s'exprime via l'intégrale de recouvrement non-linéaire :

$$\Gamma = \int d_{eff}(x, y) \phi_1(x, y) \phi_2(x, y) \phi_3(x, y) dx dy \quad (1.43)$$

La résolution du système d'équations couplées 1.15 pour la SFG (avec $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) ou 1.18 pour la DFG (avec $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$), en multipliant chaque expression par Γ/d_{eff} ,

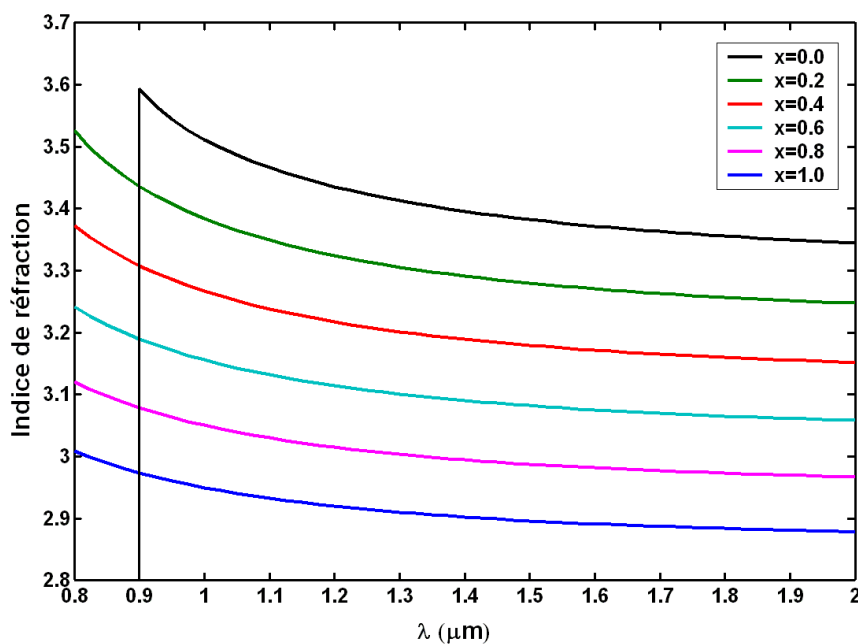


FIGURE 1.7 – Dispersion de l'alliage $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ en fonction de x (d'après M. A. Afromowitz [25]).

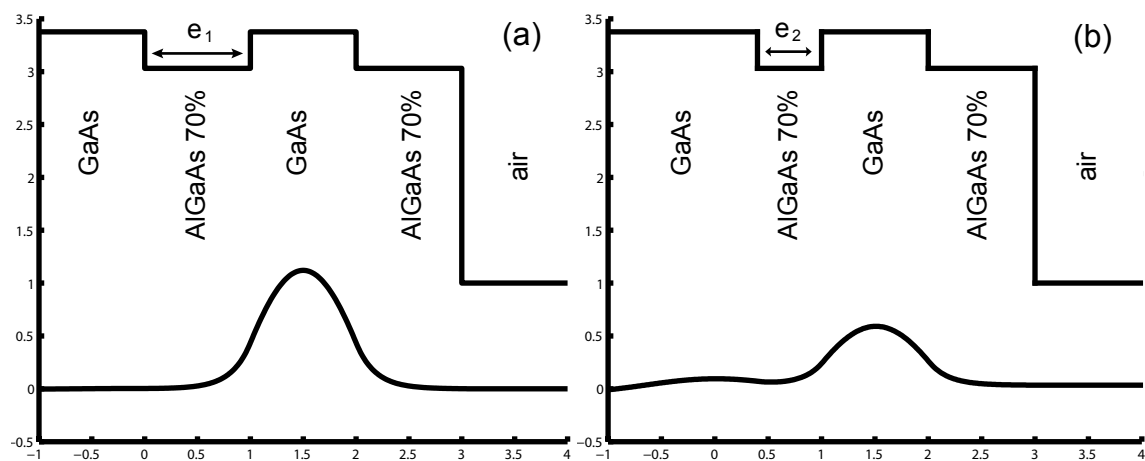


FIGURE 1.8 – Fuite d'un mode TE_0 vers le substrat dans une structure GaAs/e $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/1\text{ }\mu\text{m}$ GaAs/ $1\text{ }\mu\text{m}$ $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ à $\lambda=2\text{ }\mu\text{m}$. Si $e=e_1=1\text{ }\mu\text{m}$ le mode est bien confiné (a) mais si $e=e_2=0.5\text{ }\mu\text{m}$ le mode fuit vers le substrat (b).

conduit à une nouvelle expression de l'efficacité de conversion normalisée :

$$\eta_{norm} = \frac{8\pi^2}{n_1 n_2 n_3 c \epsilon_0 \lambda_3^2} |\Gamma|^2 \quad (1.44)$$

La comparaison des expressions 1.44 et 1.27 permet de définir l'aire effective \mathcal{A}_{eff} qui permet d'utiliser l'expression de l'efficacité de conversion dans l'approximation des ondes planes dans le cas de l'optique guidée :

$$\mathcal{A}_{eff} = \left| \frac{d_{max}}{\Gamma} \right|^2 \quad (1.45)$$

où d_{max} correspond à la valeur maximale que peut prendre $d_{eff}(x, z)$ dans le guide d'ondes.

1.3 Techniques d'accord de phase

Nous avons vu en sections 1.1.3 et 1.1.4 que l'efficacité de conversion des différents processus non-linéaires dépend du désaccord de phase Δk entre les ondes impliquées. À l'inverse de la conservation de l'énergie, la condition d'accord de phase ne se réalise pas automatiquement. Pour illustrer ce phénomène, écrivons la relation de conservation du moment dans le cas de la SHG et voyons son implication sur l'indice des modes fondamental et de second harmonique :

$$2k_\omega = k_{2\omega} \Rightarrow 2 \frac{\omega}{v_\phi(\omega)} = \frac{2\omega}{v_\phi(2\omega)} \Rightarrow 2n(\omega)\omega = n(2\omega)2\omega \quad (1.46)$$

En raison de la dispersion chromatique des matériaux, les vitesses de phase des ondes sont différentes puisque leurs fréquences diffèrent. Par ailleurs, dans les guides d'ondes, la dispersion modale s'ajoute à la dispersion du matériau. Toute la difficulté est donc d'égaliser les indices de réfraction de l'onde de pompe et du second harmonique. Dans la suite nous présentons les solutions les plus courantes pour réaliser l'accord de phase en guide d'ondes :

- accord de phase biréfringent, où l'on fait propager deux ondes selon deux polarisations différentes,
- accord de phase modal, où l'on fait propager deux ondes dans deux modes d'ordre différent,
- quasi-accord de phase, où l'on compense périodiquement le déphasage entre le mode fondamental et le second harmonique.

1.3.1 Accord de phase par biréfringence

Dans les milieux biréfringents, l'indice de réfraction n'est pas unique et dépend des directions de propagation et de polarisation de la lumière incidente. Si le milieu est uniaxe il possède deux indices de réfractions principaux tandis qu'il en possède trois s'il est biaxe. Attribué à Joseph Giordmaine et Paul Maker en 1962, l'accord de phase par biréfringence repose donc sur le fait que deux ondes dont les polarisations sont correctement orientées, expérimentent chacune un indice différent [26].

La figure 1.9 illustre ce phénomène dans un milieu uniaxe : pour une certaine polarisation ordinaire o de la lumière, l'onde voit un indice ordinaire n_o . En revanche, si la lumière est polarisée selon une direction extraordinaire e , elle expérimente une relation de dispersion différente et voit un indice extraordinaire n_e . Dans cet exemple le matériau non-linéaire est uniaxe négatif ($n_e - n_o < 0$) et l'on peut satisfaire la condition d'accord de phase si l'onde de pompe et le second harmonique sont polarisés selon les axes ordinaire et extraordinaire respectivement, et que $n_e(2\omega) = n_o(\omega)$.

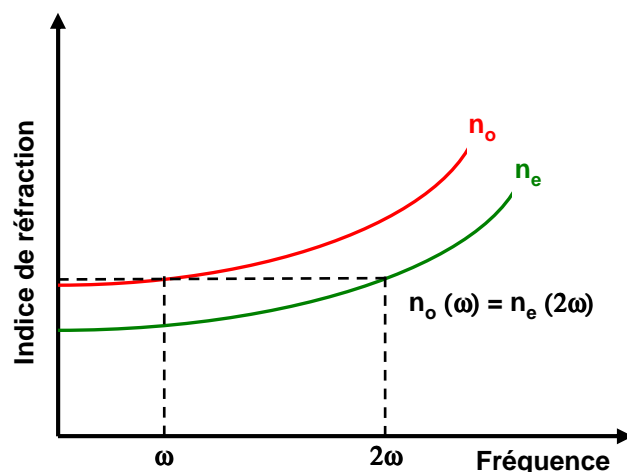


FIGURE 1.9 – Accord de phase par biréfringence.

1.3.2 Accord de phase modal

Dans les guides d'ondes l'accord de phase dépend des indices effectifs des modes interagissant plutôt que de l'indice de réfraction du matériau. Il est alors possible de dessiner des structures guidantes permettant de définir finement les fréquences d'accord de phase. Par exemple on peut utiliser le fait que les modes d'ordres supérieurs ont un indice plus faible, et accorder en phase $TE_0(\omega)$ et $TM_2(2\omega)$ pour la génération de second harmonique : $n_{TE_0}(\omega) = n_{TM_2}(2\omega)$.

Toutefois, l'efficacité de conversion associée à ce type d'accord de phase est réduite en raison du faible recouvrement non-linéaire des modes $\int d_{eff} \phi_{2\omega}^*(z) \phi_{\omega}^2(z) dz$. Si les modes sont de symétries différentes leur recouvrement est nul (voir figure 1.10). En revanche, si les modes sont de même symétrie, les efficacités de conversion sont non nulles mais tout de même réduites par rapport au cas idéal d'une interaction entre deux modes fondamentaux TE_0 et TM_0 .

Bien qu'une optimisation du dessin du guide d'ondes permette d'augmenter de manière importante le recouvrement non-linéaire [27], il est plus judicieux d'exploiter l'interaction entre des modes fondamentaux.

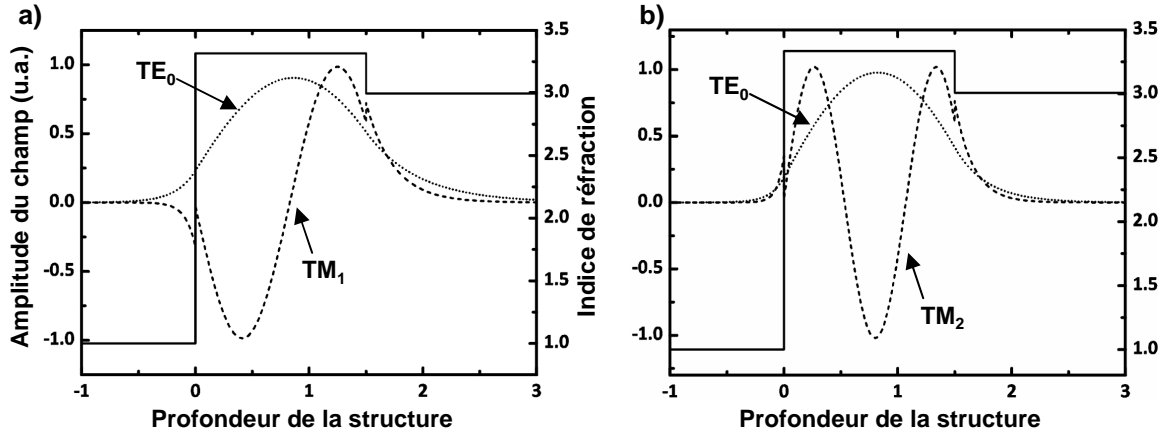


FIGURE 1.10 – Recouvrement entre modes selon leur symétrie : a) modes asymétriques, b) modes symétriques.

1.3.3 Quasi-accord de phase

Dans le cas des matériaux optiquement isotropes, comme le GaAs, l'indice de réfraction ne dépend pas de la polarisation de la lumière. Si le matériau non-linéaire est peu ou pas biréfringent, on use parfois du quasi-accord de phase (QPM)¹⁰, introduit par Armstrong en 1962 [14]. Le QPM permet de compenser la différence des vitesses de phase entre la polarisation non-linéaire et le champ généré évoquée en section 1.1.3. Après une distance correspondant à la longueur de cohérence L_c , le transfert d'énergie, qui se fait initialement entre la pompe et le champ généré, se fait entre le champ généré et la pompe. En ajustant la phase de la polarisation chaque fois que les champs ont parcouru une distance L_c il est possible de toujours transférer l'énergie de la pompe vers le champ généré. Pour cela on retourne périodiquement les domaines $\chi^{(2)}$ ce qui a pour effet de changer le signe de toutes les composantes du tenseur de susceptibilité non-linéaire¹¹. On voit sur la figure 1.11 que la puissance de la polarisation croît continûment au cours de la traversée du cristal, avec toutefois une efficacité de conversion réduite d'un facteur $(2/\pi)^2$ par rapport au cas d'accord de phase parfait¹². Le désaccord de phase se réécrit alors sous la forme :

$$\Delta k = k_p - k_s - k_c - K \quad (1.47)$$

où $K = 2m\pi/\Lambda$ est le vecteur du réseau formé par le retournement périodique, de période Λ , du signe du $\chi^{(2)}$.

Ce principe a été expérimenté avec succès dans des dispositifs non-linéaires basés sur l'utilisation de matériaux ferroélectriques ([1, 28]), polymériques ([29]) et semi-conducteurs ([30, 31]).

Aujourd'hui, l'obtention du quasi-accord de phase dans le GaAs repose le plus sou-

10. Le QPM permet aussi dans certains matériaux, comme le LiNbO₃ par exemple, d'exploiter un coefficient non-linéaire plus grand que celui accessible avec l'accord de phase par biréfringence.

11. Dans un QPM d'ordre m (m impaire) le retournement de la polarisation se fait tous les $m \times L_c$.

12. Le coefficient non-linéaire effectif, d_m , pour une interaction QPM est relié au coefficient non-linéaire effectif d'une interaction conventionnelle *via* la relation suivante :

$$d_m = \begin{cases} \frac{2}{m\pi} d_{eff} & \text{pour } m \text{ impaire} \\ 0 & \text{pour } m \text{ paire} \end{cases}$$

L'efficacité de conversion dépendant du carré du coefficient non-linéaire effectif, il y a une réduction d'un facteur $(2/\pi)^2$ pour un QPM d'ordre 1.

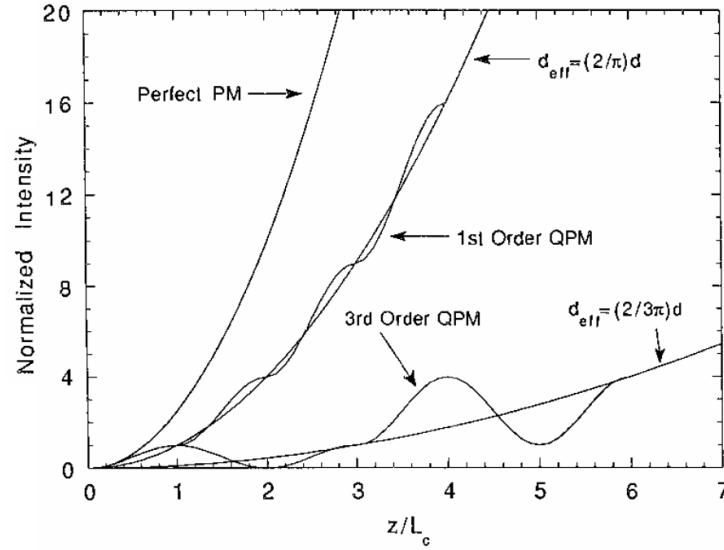


FIGURE 1.11 – Intensité normalisée de SHG au cours de la propagation dans le cas parfaitement accordé en phase (PM) et dans un milieu non-linéaire quasi-accordé en phase d'ordre 1 et 3 (d'après [16]).

vent sur l'utilisation de *templates* GaAs/Ge/GaAs tels que représentés sur la figure 1.12 d'abord proposée par Eyres [32].

1.3.4 Accords de phase par biréfringence de forme

Dans les guides d'ondes (plans ou 2D), le confinement vertical des modes est assuré par la présence, de part et d'autre du cœur guidant, de couches d'indice de réfraction plus faible que celui du cœur. L'accord de phase par biréfringence de forme repose sur la création, au sein du cœur, de discontinuités d'indice. Tout mode polarisé dans la direction TM (perpendiculairement aux plans des couches) subit une discontinuité aux interfaces. Les indices effectifs des modes TE (polarisé parallèlement aux couches) et TM sont donc légèrement modifiés, mais dans des quantités différentes, créant ainsi une biréfringence dite de forme. En particulier, on peut créer de la biréfringence dans un matériau optiquement isotrope tel que le GaAs.

Ce type de biréfringence peut être appliqué à des guides constitués d'un cœur guidant multicouche et périodique. Les indices ordinaire et extraordinaire sont alors

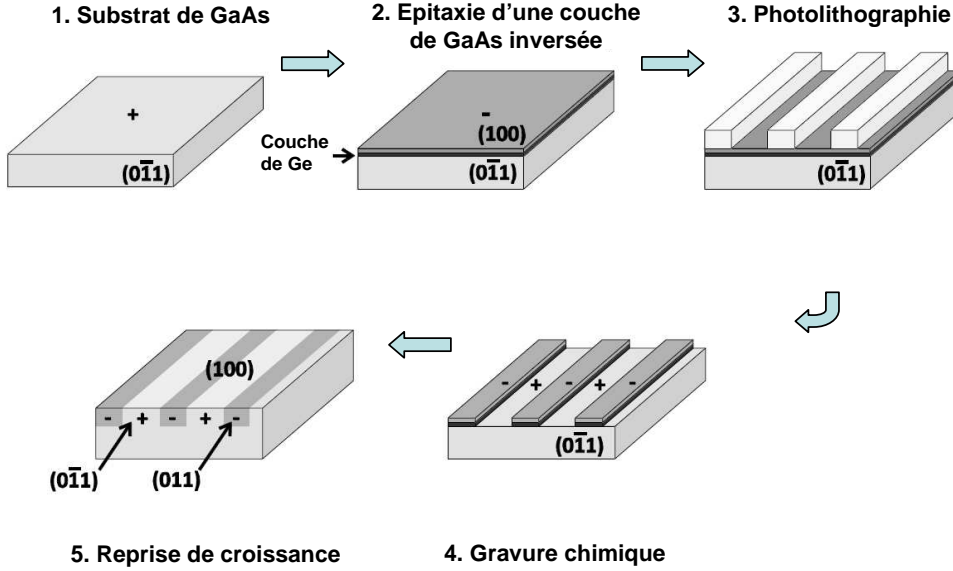


FIGURE 1.12 – Schéma d'obtention du QPM en GaAs.

donnés par les relations suivantes [24, 33] :

$$\begin{cases} n_o^2 = \frac{h_1}{\Lambda} n_1^2 + \frac{h_2}{\Lambda} n_2^2 \\ \frac{1}{n_e^2} = \frac{h_1}{\Lambda} \frac{1}{n_1^2} + \frac{h_2}{\Lambda} \frac{1}{n_2^2} \end{cases} \quad (1.48)$$

où n_1 et n_2 sont les indices des couches 1 et 2 d'épaisseur respective h_1 et h_2 , et Λ est la période de la structure. La biréfringence de forme $\Delta n = n_{TE} - n_{TM}$ augmente sensiblement avec le contraste d'indice $|n_1 - n_2|$. On dispose alors de trois degrés de liberté supplémentaires pour réaliser l'accord de phase $n_{TM}(2\omega) = n_{TE}(\omega)$.

Cette méthode a été utilisée pour la première fois dans des structures GaAs/AlGaAs par Van der Ziel en 1975 pour la génération de second harmonique à $10.6\mu\text{m}$ [3]. Malheureusement, la biréfringence maximale atteignable avec ces matériaux ne permet pas d'obtenir l'accord de phase dans le proche et moyen infrarouge.

En 1990 Dallesasse découvre un procédé de formation d'un oxyde d'aluminium stable (AlOx) [4]. Ce procédé permet d'oxyder des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ de façon sélective, en privilégiant les couches à forte teneur en aluminium. Par ailleurs, l'indice de réfraction de l'AlOx ($n \approx 1.6$) est très différent de celui du GaAs ($n \approx 3.4$), et la

biréfringence de forme obtenue dans des structures GaAs/AlOx permet de compenser la dispersion, et par conséquent la conversion de fréquences, à plus basses longueurs d'onde [34].

Grâce à cette nouvelle solution, de nombreuses interactions non-linéaires sont rapidement démontrées :

- DFG entre une source à $1\ \mu\text{m}$ et une source accordable autour de $1.3\ \mu\text{m}$ pour produire un signal ajustable compris entre 5.2 et $5.6\ \mu\text{m}$ [35].
- SHG à partir d'une source continue à $1.6\ \mu\text{m}$ ou d'une source pulsée à $2.1\ \mu\text{m}$ ([10] et [36] respectivement).
- fluorescence paramétrique à l'aide d'une pompe à $1.06\ \mu\text{m}$ [8].

Dans toutes ces expériences, l'efficacité de conversion était limitée par des niveaux de pertes élevés : un à deux ordres de grandeur plus importants que dans les guides d'ondes GaAs/AlGaAs non oxydés ou dans les guides d'ondes LiNbO₃ à faibles pertes.

Aujourd'hui, malgré une réduction considérable de ces pertes dans les guides d'ondes GaAs/AlOx, les pertes supplémentaires induites par l'étape d'oxydation demeurent l'obstacle majeur dans la démonstration de l'oscillation paramétrique optique. Néanmoins, l'équipe DON du laboratoire *Matériaux et Phénomènes Quantiques* a dernièrement fait la démonstration des très bonnes performances atteignables dans ce type de structure :

- une efficacité de conversion dans un processus de fluorescence paramétrique estimée à $\eta_{FP} = 1.5 \cdot 10^{-6}$ ([9]) soit une amélioration d'un facteur 2 par rapport à la démonstration de De Rossi *et al.* [8],
- une amplification paramétrique $G = 4.5\%$ dans un guide d'ondes de $3\ \text{mm}$, ce qui est la plus grande valeur reportée à ce jour dans un guide d'ondes semi-conducteur [37],
- une efficacité de conversion dans un processus de SHG $\eta = (130 \pm 20)\ \% W^{-1}$ dans un guide de $3\ \text{mm}$ ([9]) ; ce qui est la plus grande valeur reportée pour un guide AlGaAs à ce jour et correspond à une efficacité de conversion normalisée $\eta_{norm} = 1500 \pm 200\ \% W^{-1} \text{ cm}^{-2}$, comparable avec les meilleurs résultats obtenus dans des guides d'ondes PPLN [38].

Enfin notons la récente publication de Khurgin *et al.* [39], qui proposent d'obtenir de la biréfringence de forme dans des guides d'ondes AlGaAs suspendus. Leur idée reprend le concept de *slotted waveguides* proposé initialement pour des guides d'ondes en silicium [40], mais en faisant des ouvertures d'air parallèles au plan des couches. De

cette façon ils envisagent une efficacité de conversion $\eta_{DFG} = 400 \text{ W}^{-1}\text{cm}^{-2}$, pour un processus de DFG entre une pompe à $\lambda_p = 1060 \text{ nm}$ et un signal à $\lambda_s = 1554 \text{ nm}$. L'intérêt d'une telle structure réside dans la grande biréfringence créée avec seulement une fente d'air. Par ailleurs, Khurgin suggère la possibilité d'accorder en phase les trois ondes en faisant varier, à l'aide d'actuateurs électrostatiques, l'épaisseur de la couche d'air.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les concepts de base de l'optique non-linéaire : origine microscopique, exemples de mélange à trois ondes et intérêt de l'oscillateur paramétrique optique. Nous avons vu que dans les guides d'ondes les densités de puissance sont plus importantes que dans les milieux massifs ce qui permet d'atteindre des efficacités de conversion supérieures. Nous avons aussi souligné l'importance de l'accord de phase, qui se traduit par le respect de la conservation de l'énergie et du moment des champs interagissant entre eux. Lorsque le matériau non-linéaire n'est pas biréfringent nous avons montré qu'il existe différentes techniques pour obtenir l'accord de phase.

Le GaAs est optiquement isotrope mais possède une susceptibilité d'ordre 2 parmi les plus importantes des matériaux conventionnels [16]. Dans ce cas, les techniques d'accord de phase les plus courantes sont le quasi-accord de phase et la biréfringence de forme. La première souffrant de pertes importantes, l'équipe DON s'est tournée vers la biréfringence de forme, et a déjà montré les bonnes performances obtenues dans des guides d'ondes à biréfringence de forme GaAs/AlOx.

Dans le chapitre qui suit nous présentons les aspects technologiques liés à l'emploi de l'AlOx. L'AlOx a en effet fixé un certain nombre de contraintes pour le design de structures pour la conversion de fréquences.

Chapitre 2

Conception et réalisation de guides d'ondes GaAs-AlOx

La comparaison des différentes techniques d'accord de phase adaptées au GaAs laisse entrevoir l'intérêt certain de la biréfringence de forme *via* l'utilisation de l'AlOx. Cette solution fut proposée en 1996 par *Thomson CSF* [6,7], dont sont issus les membres de notre groupe de recherche qui ont poursuivi les efforts pour la réalisation d'un OPO intégré.

Dans ce chapitre nous décrivons les étapes de conception et de réalisation d'une source non-linéaire en GaAs/AlOx. Nous insistons sur les contraintes liées au *design* de la structure, mais aussi sur les difficultés rencontrées lors des étapes de fabrication.

2.1 Un design optimisé pour la conversion de fréquence

2.1.1 Structure

La recherche d'une structure permettant de réaliser l'accord de phase grâce à la biréfringence de forme est soumise à de nombreuses contraintes, parmi lesquelles la plus importante est la compensation de la dispersion du guide par la biréfringence.

Cette recherche, effectuée dans le cadre de la thèse de Marco Ravaro, a été réalisée à l'aide de simulations à une dimension (1D) *via* la méthode de la matrice de transfert [24]. Ce choix est justifié par le temps de calcul très réduit par rapport à

des simulations 2D. Cela est particulièrement vrai dans le cas où la largeur du guide est plus grande que sa hauteur. En effet, dans ce cas de figure, le fait de négliger le confinement latéral ne réduit que très peu la précision des calculs, et il reste possible de vérifier les résultats 1D en faisant appel à d'autres méthodes. La méthode de la matrice de transfert permet de calculer les valeurs propres (indices effectifs des modes propagés) et les vecteurs propres (distribution spatiale de ces modes) d'une structure multicouche. Les premières sont nécessaires pour vérifier les conditions d'accord de phase alors que les secondes sont utilisées pour déterminer l'intégrale de recouvrement non-linéaire (éq. 1.2.2). Ces simulations ont été réalisées en considérant le modèle d'Afromovitz pour le calcul des indices de réfraction des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [25] et en considérant un indice de réfraction de 1.6 pour l'AlOx [41, 42].

Dans le cas de structures GaAs/AlGaAs dont la croissance est réalisée sur du GaAs (100), les interactions du second ordre ne peuvent se faire qu'entre deux ondes polarisées TE et une onde polarisée TM¹³. Par ailleurs, l'indice effectif des modes TM est plus faible que celui des modes TE en raison de la biréfringence de forme. Pour que la biréfringence compense la dispersion il faut donc mettre en œuvre un accord de phase de type I¹⁴, c'est-à-dire avec la pompe à $\lambda_p \approx 1 \mu\text{m}$ polarisée TM. On peut alors écrire la condition d'accord de phase sous la forme suivante :

$$n_{TM_0}(1 \mu\text{m}) = n_{TE_0}(2 \mu\text{m}) \quad (2.1)$$

Lors de la recherche des solutions propres d'une structure par les simulations 1D, l'objectif est donc de résoudre l'équation ci-dessous, qui traduit la compensation de la dispersion du mode TE₀ entre 1 et 2 μm par la biréfringence :

$$\underbrace{n_{TE_0}(1 \mu\text{m}) - n_{TE_0}(2 \mu\text{m})}_{\text{dispersion}} = \underbrace{n_{TE_0}(1 \mu\text{m}) - n_{TM_0}(1 \mu\text{m})}_{\text{biréfringence}} \quad (2.2)$$

L'optimisation de la structure répond à un certain nombre de contraintes imposées par :

1. la maximisation de ses performances à travers :

13. TE : le champ électrique est parallèle au plan des couches ; TM : le champ électrique est presque parallèle à la direction de croissance.

14. L'accord de phase de type I ou de type II fait référence à la polarisation des ondes signal et complémentaire. Dans le cas de type I, le signal et le complémentaire ont la même polarisation (TE dans nos guides), alors que dans le cas de type II ils sont polarisés orthogonalement.

- la maximisation de l'intégrale de recouvrement non-linéaire *via* la recherche de modes ayant des distributions spatiales les plus proches possibles, et en tenant compte de la diminution du $\chi^{(2)}$ de l'AlGaAs avec la concentration en Al [43],
 - la réduction du nombre de modes guidés pour éviter le couplage de la pompe injectée dans des modes non accordés en phase ;
2. la présence d'AlOx dans le cœur :
- l'oxydation sélective est possible pour des épaisseurs de couches supérieures à environ 10 nm [44],
 - l'oxydation sélective de l' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ est d'autant plus rapide que l'alliage est riche en Al (la cinétique d'oxydation est 8 fois plus rapide si $x = 0.98$ que si $x = 0.92$) et on considère que si $x < 0.7$ les couches ne s'oxydent pas¹⁵ ; les gaines ne devant pas être oxydées mais repousser le plus possible les modes guidés dans le cœur, on fixe leur teneur en Al à 70 %,
 - l'oxydation étant responsable de la plus grande partie des pertes de propagation, il faut limiter le nombre de couches d'AlOx.

La dispersion du GaAs entre 1 et 2 μm vaut 0.21. La biréfringence doit donc atteindre cette valeur. La première chose a été de fixer le rapport des épaisseurs des couches d'AlOx (h_1) et de GaAs (h_2). La biréfringence diminue avec l'augmentation de h_1 et h_2 . La figure 2.1a indique qu'une biréfringence de forme suffisante pour compenser la dispersion est obtenue pour des épaisseurs d'AlOx de 40 nm ou moins. La figure 2.1b montre qu'avec cette condition il faut au moins 5 couches d'AlOx pour atteindre une biréfringence suffisante. Dans la mesure où les pertes de propagation sont susceptibles d'augmenter avec le nombre de couches d'AlOx, il est préférable d'opter pour une structure ayant le moins de couches d'AlOx, soit 5 dans notre cas.

Deux structures ont alors été dessinées, l'une dont l'accord de phase à la dégénérescence est atteint pour une longueur d'onde de pompe $\lambda_p = 1.064 \mu\text{m}$ (référéncée ART235), et l'autre pour $\lambda_p = 1.03 \mu\text{m}$ (référéncée ART237). Ces structures sont décrites dans le tableau 2.1.

15. À 420°C la vitesse d'oxydation, v_{oxy} , d'une couche de 100 nm d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ est $v_{oxy} < 0.001 \mu\text{m}/\text{min}$, $v_{oxy} = 0.006, 0.02, 0.08$ et $0.6 \mu\text{m}/\text{min}$ pour $x = 0.6, 0.77, 0.84, 0.92$ et 0.98 respectivement [45, 46].

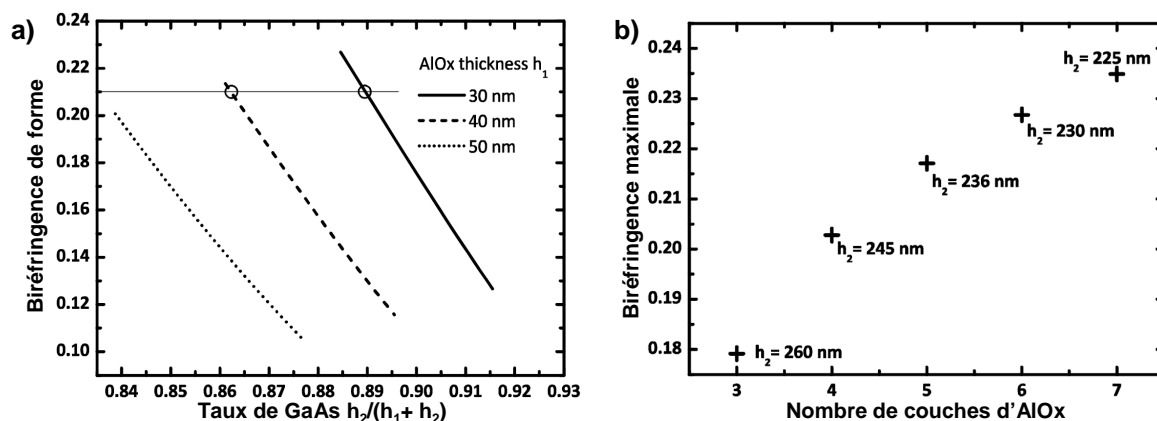


FIGURE 2.1 – Variation de la biréfringence de forme, à $1.03 \mu\text{m}$, de la structure suivante : substrat GaAs/1000 nm $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/h_1$ $\text{AlOx}/n \times (h_2 \text{ GaAs}/h_1 \text{ AlOx})/1000 \text{ nm } \text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/\text{air}$, a) pour différentes valeurs des paramètres h_1 et h_2 et avec $n=5$, b) pour n variable, $h_1=30 \text{ nm}$ et la plus petite valeur de h_2 permettant un bon confinement du mode TM_0 (d'après [2]).

		ART235		ART237	
Couche	Matériaux	Épaisseur (nm)	Répétition	Épaisseur (nm)	Répétition
protection	GaAs	30		30	
confinante	$\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$	1000		1000	
cœur	AlOx	34.5	$\times 4$	37.5	$\times 4$
	GaAs	272		255	
	AlOx	34.5		37.5	
confinante	$\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$	1000		1000	
tampon	$\text{Al}_{0.92}\text{Ga}_{0.08}\text{As}$	1000		1000	
substrat	GaAs	/		/	

TABLE 2.1 – Structures simulées pour ART235 et ART237 (détails des croissances en annexe B.

2.1.2 Performances attendues

Afin d'obtenir des dispositifs optimisés aux longueurs d'onde de travail voulues, un certain nombre de contraintes ont été retenues pour la recherche du dessin des structures. Malgré tout, ces structures peuvent être affectées par d'autres contraintes, essentiellement technologiques, modifiant principalement leur accordabilité et leur coefficient de gain paramétrique.

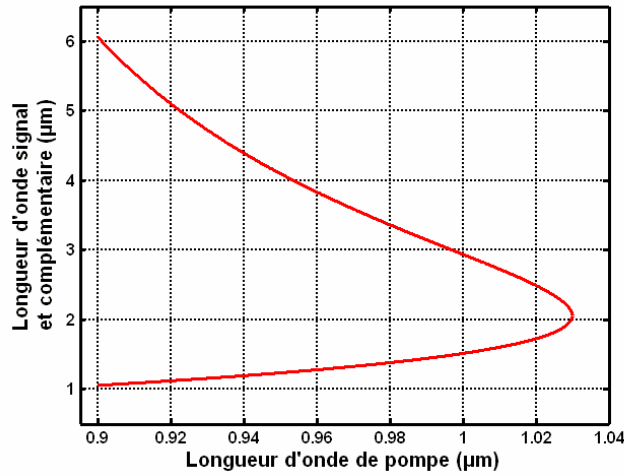


FIGURE 2.2 – Courbe d'accordabilité de ART237.

Sur la figure 2.2, on constate que les longueurs d'onde du signal et du complémentaire peuvent être accordées sur une très grande bande spectrale à travers une très faible variation de la longueur d'onde de pompe. Cette caractéristique est un grand avantage dans l'optique de l'intégration d'une diode laser avec un OPO. Elle est une conséquence de la plus grande dispersion du guide autour de 1 μm qu'autour de 2 μm , ainsi que l'illustre la relation suivante entre la longueur d'onde de la pompe, du signal et du complémentaire [47] :

$$\lambda_{s,c} = \frac{2\lambda_p}{1 \pm \alpha \sqrt{\frac{\lambda_p^0}{\lambda_p} - 1}} \quad (2.3)$$

où α désigne l'ouverture de la courbe d'accordabilité, définie par :

$$\alpha = \sqrt{\frac{\frac{\partial n_{TM_0}}{\partial \lambda}(\lambda_p^0)}{2 \frac{\partial n_{TE_0}}{\partial \lambda}(\lambda_s^0)} - 1} \quad (2.4)$$

où l'on constate qu'une plus grande dispersion pour la pompe augmente l'ouverture de l'accordabilité. Dans ces deux relations, l'exposant 0 fait référence à la valeur à la dégénérescence.

Cependant, la dispersion des guides d'ondes est extrêmement dépendante de paramètres mal maîtrisés lors de la croissance des structures ou de la fabrication des guides. Il a été montré que celle-ci varie de manière considérable avec la variation des épaisseurs des couches, de leur indice de réfraction ou de la largeur des guides [47]. La figure 2.3 illustre la modification de la courbe d'accordabilité de la structure ART235. Sur la figure 2.3a on montre qu'une incertitude de 1 % sur la valeur de l'indice du GaAs n'a qu'une faible incidence sur la position de la dégénérescence. De plus, les indices de $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ sont connus avec une précision de l'ordre de 1 ‰. Il est donc clair que l'indice de réfraction des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ n'est pas un facteur limitant.

En revanche, l'indice de réfraction de l'AlOx semble varier avec le procédé d'oxydation. Cette valeur oscille entre 1.4 et 1.6 selon les sources [42, 48, 49]. Une telle incertitude entraîne une grande variation de la position de la dégénérescence, comme le montre la figure 2.3b.

Lors de l'épitaxie par jet moléculaire, la précision sur les épaisseurs des couches est de l'ordre de 1 %. On constate sur la figure 2.3c, qu'une telle variation pour le GaAs déplace la dégénérescence de 5 nm. L'épaisseur des couches d'AlOx est encore plus difficile à maîtriser. En effet, les couches d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ tendent à se rétracter au cours de l'oxydation. Le facteur de contraction dépend des conditions d'oxydation et peut atteindre facilement 10 %. On voit sur la même figure que la variation de l'épaisseur de ces couches se traduit aussi par un déplacement de la dégénérescence.

Enfin, avec la réduction de la largeur des guides, les indices effectifs des modes propagés diminuent. Cet effet est plus fort pour le signal et le complémentaire dont la longueur d'onde est plus grande que celle de la pompe. Afin de maintenir la condition d'accord de phase, l'indice effectif de la pompe à la dégénérescence doit diminuer. La conséquence d'une telle variation est le déplacement vers les plus hautes longueurs d'onde de la dégénérescence.

L'autre grandeur affectée par les contraintes mentionnées précédemment, est le coefficient de gain paramétrique défini en section 1.1.4. Dans l'équation 1.31, on voit que ce coefficient dépend de deux paramètres : le facteur de dégénérescence δ , et l'aire de section efficace \mathcal{A}_{eff} , définie en section 1.2.2 pour les guides d'ondes.

Le premier constat est donc que plus on s'éloigne de la dégénérescence, plus on

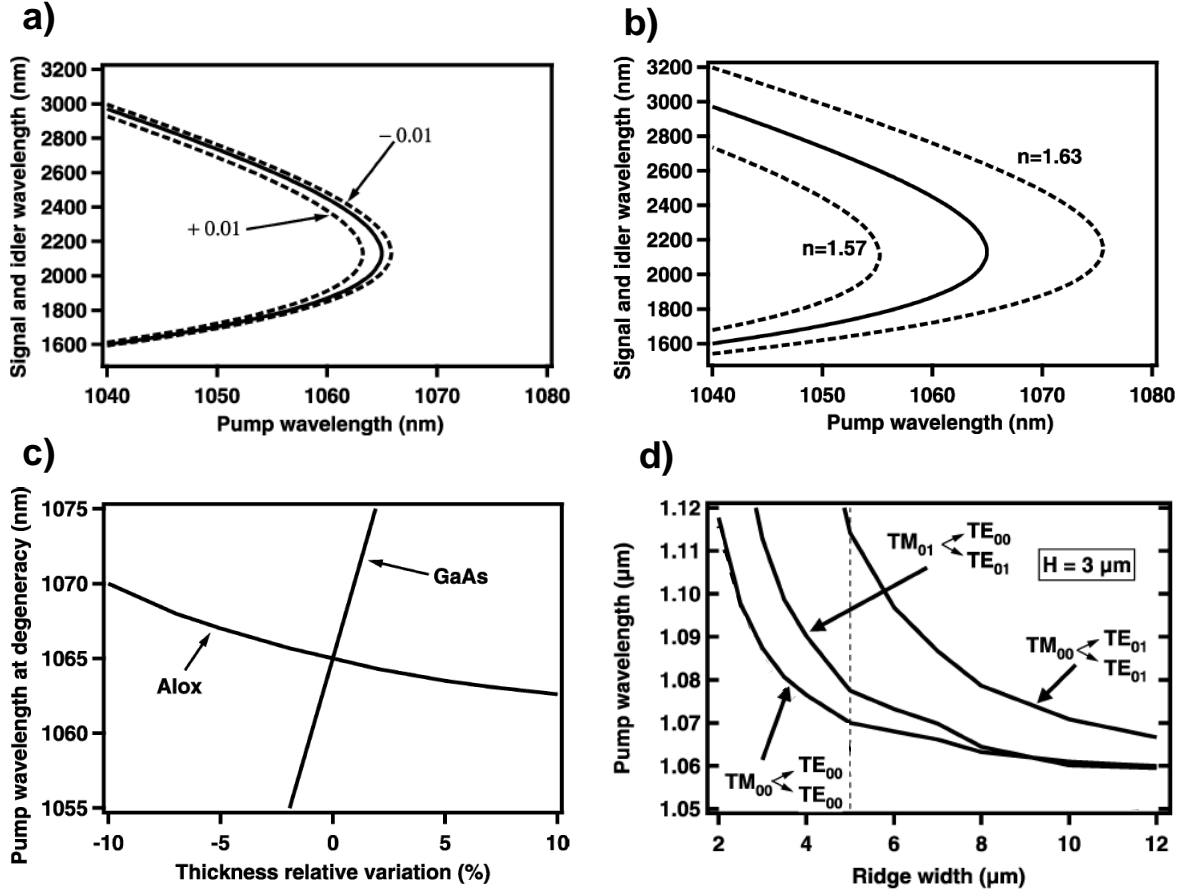


FIGURE 2.3 – Variation de l'accord de phase de ART235 en fonction de : a) l'indice de réfraction du GaAs, b) l'indice de réfraction de l'AlOx, c) les épaisseurs des couches et d) la largeur des guides (pour trois processus paramétriques différents), d'après [47].

réduit le coefficient de gain paramétrique. La seconde chose est que plus on s'éloigne de la dégénérescence, plus l'intégrale de recouvrement entre les modes diminue, réduisant par la même occasion le coefficient de gain paramétrique. Notons qu'au-delà de 4 μm le mode complémentaire n'est plus guidé car il fuit dans le substrat. La génération paramétrique dans les structures ART235 et ART237 autorise donc une émission entre 1.2 et 4 μm . Dans cette plage, le coefficient de gain paramétrique ne diminue que d'environ 20 % par rapport à la valeur maximale obtenue à la dégénérescence, permettant d'espérer la réalisation d'un OPO largement accordable.

2.2 Fabrication des guides GaAs/AlOx

Nous détaillons dans cette section les différentes étapes de fabrication des guides d'ondes GaAs/AlOx. Des défauts apparaissent au cours de leur fabrication, responsables de pertes optiques qui affectent la qualité du dispositif, et réduisent ses performances en terme de conversion non-linéaire de fréquences.

2.2.1 De la croissance à la gravure

Croissance

Les croissances de toutes les structures étudiées au cours de ces dernières années ont été réalisées par Xavier Marcadet de *III-V Lab* à Palaiseau. La méthode d'épitaxie employée est l'épitaxie par jets moléculaires (EJM), parfaitement adaptée à la réalisation de structures multicouches pour l'optique. En effet, l'EJM permet un contrôle très précis des épaisseurs des différentes couches, ce qui est indispensable à la réalisation de structures accordées en phase à la longueur d'onde choisie. De plus l'EJM permet la croissance de structures multicouches avec des interfaces très abruptes, ce qui est indispensable pour limiter les pertes par diffusion au cours de la propagation des modes guidés.

Les éléments sélectionnés, comme par exemple Ga, As et Al, sont chauffés dans des cellules d'effusion ou de *Knüdsen*. Après évaporation, la propagation de ces espèces jusqu'au substrat se produit dans un régime de jet moléculaire (pas de collision pendant leur trajet) comme l'enceinte est maintenue sous ultra-vide ($\approx 10^{-10}$ torr). De ce fait, les atomes ou molécules évaporées interagissent donc seulement à la surface du substrat. Ils y sont soumis à différents processus (adsorption, dissociation, diffusion, chimisorption ou absorption) pour finalement former le matériau cristallin recherché.

Les faibles flux utilisés (0.01 à 0.3 nm/s) permettent d'atteindre des épaisseurs aussi faibles qu'une mono-couche. Par ailleurs, la température de travail, comprise usuellement entre 450 et 600°C pour le GaAs, plus faible que pour les autres techniques d'épitaxie, permet de limiter les phénomènes d'interdiffusion des espèces aux interfaces. L'émission des flux d'espèces peut être interrompue au moyen de caches localisés en face des orifices des cellules. De cette façon, il est possible de modifier la composition

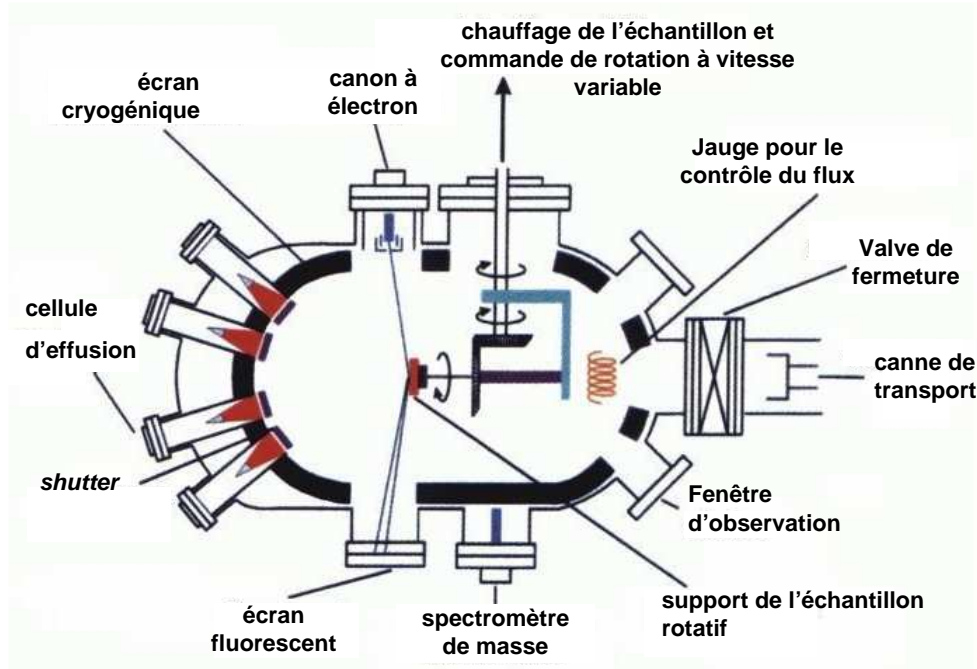


FIGURE 2.4 – Représentation schématique d'un bâti EJM.

chimique et les propriétés des couches épitaxiées.

Comme l'illustre la figure 2.4, un bâti EJM est généralement équipé de plusieurs cellules d'effusion, d'un manipulateur pour le chauffage de l'échantillon et sa rotation, d'un canon à électrons et d'un écran pour l'analyse RHEED¹⁶, et d'autres accessoires.

Lors de la croissance d'alliages multiples du type $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, une attention particulière doit être portée à toute interruption de croissance et aux changements de température des cellules sources. L'emploi d'alliages digitaux, ou super-réseaux équivalents,

16. La diffraction d'électrons de haute énergie (Reflection High Energy Electron Diffraction en anglais) est une technique sensible à la morphologie de surface, et qui renseigne au cours de la croissance, sur la monocristallinité, l'orientation, la planéité et l'arrangement atomique de la couche de surface. Ces données sont utilisées pour l'optimisation des conditions de croissance. Il est aussi possible d'observer *in situ* une dynamique de croissance, *via* des variations temporelles de l'intensité de la tâche spéculaire du diagramme RHEED. L'intensité oscille avec une période directement liée à la croissance d'une monocouche. L'évaluation de ces changements temporels permet de déterminer la vitesse de croissance des différents matériaux épitaxiés (GaAs, AlAs, AlGaAs), et donc est une indication précieuse pour l'obtention de couches d'épaisseur et de composition données.

repose sur l'alternance de couches d'alliages binaires (GaAs et AlAs par exemple), dont la période est de quelques monocouches. Cette alternative a émergé dans la seconde moitié des années 90 pour la croissance par EJM d'alliages ternaires ou quaternaires, sans utiliser de sources supplémentaires ni changements laborieux de la température des cellules, lors des interruptions de croissance [50, 51]. Cette technique a été employée pour la réalisation des couches d' $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$, d' $\text{Al}_{0.92}\text{Ga}_{0.08}\text{As}$ ou d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$, présentes dans les deux structures réalisées (ART235 et ART237), comme on peut le voir dans les fiches de croissance en annexe B.

Dans le cas particulier de structures multicouches GaAs/AlAs, malgré l'excellente définition des interfaces, une rugosité de l'ordre de 3 Å, a souvent été mise en évidence, soit par des mesures de diffraction de rayons X en incidence rasante [52] ou par des mesures de transport électronique [53, 54]. Toutefois, plus récemment des rugosités d'interface de 2-2.5 Å, voire même 1.5 Å, ont été évaluées par des mesures RHEED [55] ou sous champ magnétique [56] mais ces performances restent exceptionnelles. Dans le cas de nos échantillons, le bâti de croissance utilisé est à l'état de l'art et la rugosité des interfaces GaAs/AlGaAs se situe autour de 3 Å. Il apparaît donc de façon évidente, qu'une première source de pertes par diffusion des photons au cours de leur propagation dans les guides GaAs/AlOx, est intrinsèque à la méthode de croissance des structures.

Gravure

La fabrication des guides d'ondes fait intervenir les étapes technologiques suivantes : lithographie, gravure (décrites dans cette section) et oxydation sélective (décrite en section 2.2.2).

La lithographie consiste en la définition du motif géométrique que l'on cherche à reproduire - dans notre cas : des guides d'ondes de 3-4 μm de large (ainsi que des *mesas* de 50 μm de côté, utilisés pour tester l'oxydation). La méthode utilisée ici consiste en la photolithographie UV d'une résine photosensible. Une couche de résine photosensible est étalée de manière homogène à la surface de l'échantillon, puis étuvée. Les motifs à reproduire sont imprimés en chrome sur un masque de verre, qui est plaqué sur la surface de l'échantillon. On insole ensuite l'échantillon avec une lampe UV. Les zones de résine insolées polymérisent, alors que celles masquées ne changent pas. Lors du développement de la résine, selon qu'elle est dite positive ou négative, les zones poly-

mérisées se dissolvent ou non. Il reste alors un motif en résine qui est soit le positif, soit le négatif, du motif du masque. Lors de la gravure qui est ensuite réalisée, la résine protège les zones de l'échantillon situées en dessous.

Il existe de nombreux moyens de graver les échantillons. Deux grandes classes émergent : les gravures humides et les gravures sèches. Parmi celles-ci, présentons succinctement le principe des gravures chimiques et de la RIE (acronyme de reactive ion etching).

Les principales étapes des gravures chimiques humides font intervenir des mécanismes d'oxydo-réduction à la surface du semi-conducteur, et le retrait de produits de réaction solubles. La vitesse de gravure peut donc être limitée par la diffusion des espèces gravantes actives à la surface, ou par le retrait du produit soluble. Ce type de gravure produit parfois des "défauts" liés à une anisotropie de gravure ou une sélectivité des espèces chimiques gravées. Par rapport aux gravures sèches, les gravures chimiques imposent de disposer d'une grande quantité de solutions acides, augmentent les risques liés à l'exposition à des produits chimiques et des fumées. La formation de bulles lors de la gravure peut aussi être à l'origine de régions non gravées uniformément. En raison de l'aspect plus ou moins isotrope de ce type de gravure, il est nécessaire de définir un masque de résine plus grand que le motif final recherché à cause du phénomène de sous-gravure.

La gravure ionique réactive (RIE) repose sur le bombardement ionique de l'échantillon. Cette technique permet une gravure de nature à la fois physique (réaction entre le matériau et un plasma) et chimique (réaction entre le réactif et les surfaces). Des gaz réactifs entrent dans le bâti sous vide et sont ionisés par un signal radiofréquence. Les électrons, issus de cette ionisation, plus mobiles que les ions, sont facilement adsorbés par l'échantillon, le polarisant négativement. La perte d'électrons par le nuage ionique polarise celui-ci positivement. Les ions sont donc accélérés vers l'échantillon, interagissant, comme nous l'avons dit, par voie physique et chimique. L'avantage majeur de la RIE est sa grande isotropie. En revanche, cette technique est plus lourde à mettre en œuvre que la gravure chimique, et son taux de gravure plus bas.

La diversité des solutions offertes explique les changements successifs de techniques de fabrication des guides d'ondes AlOx. Nous les résumons dans le tableau 2.2.

Les premières démonstrations de conversion de fréquence utilisant l'accord de phase par biréfringence de forme ont été faites sur des guides gravés par RIE [7,35]. Les guides étaient alors gravés en deux fois : un *ridge* était d'abord gravé dans la couche confinante

Réf.	Année	Gravure	Pertes (dB/cm)		Remarques
			avant	après oxydation	
[6]	1996	RIE (gravure double)	5	7	
[8]	2001	chimique (gravure double) : H ₂ SO ₄ :H ₂ O ₂ :H ₂ O	0.3	4	
[2]	NC	chimique (gravure simple) : H ₂ SO ₄ :H ₂ O ₂ :H ₂ O	NC	2	homogénéité moyenne ; rugosité des flancs : $\sigma_{rms}=3$ nm
[9]	2006	chimique (gravure simple) : HBr :CH ₃ COOH :Cr ₂ K ₂ O ₇	0.4	2	bonne homogénéité ; rugosité des flancs : $\sigma_{rms}=2$ nm
Cette thèse		chimique (gravure simple) : HBr :H ₂ O ₂ :H ₂ O	non mesurable		délamination des couches d'AlOx

TABLE 2.2 – Historique des méthodes de gravure des guides d'ondes (NC = non connu).

supérieure pour assurer le confinement latéral des modes de propagation, puis un *mesa* plus large était gravé dans un deuxième temps, découvrant le cœur multicouche afin de permettre l'oxydation ultérieure (cf. figure 2.5a). Ainsi les couches riches en Al situées sous le *ridge* étaient complètement oxydées sans que les fronts d'oxydation n'aient à se rejoindre. De cette façon il ne pouvait y avoir de détérioration des propriétés des guides liée à une suroxydation de ces couches.

Bien qu'offrant un meilleur contrôle de la taille et de la forme des motifs gravés, la RIE fut remplacée par une gravure chimique au moyen de la solution H₂SO₄ :H₂O₂ :H₂O, offrant des flancs de guides plus lisses et permettant de réduire les pertes de propagation. Comme indiqué dans le tableau 2.2, l'essentiel des pertes était dû à l'étape d'oxydation.

Dans l'espoir de réduire les pertes intrinsèques à l'oxydation, le schéma à double gravure a été abandonné au profit de la gravure plus profonde des guides, permettant à la fois le confinement latéral et l'exposition du cœur à l'air pour son oxydation (cf. figure 2.5b). Outre la réduction de la diffusion par les flancs des guides, grâce à la réduction de la rugosité par rapport à la RIE, la gravure chimique plus profonde d'un

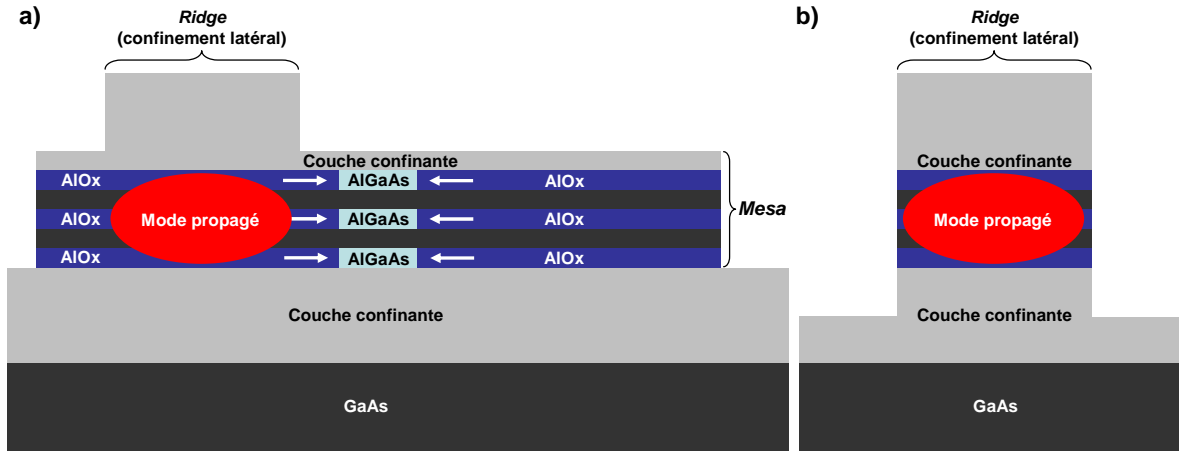


FIGURE 2.5 – Schéma d'une structure a) doublement ou b) simplement gravée.

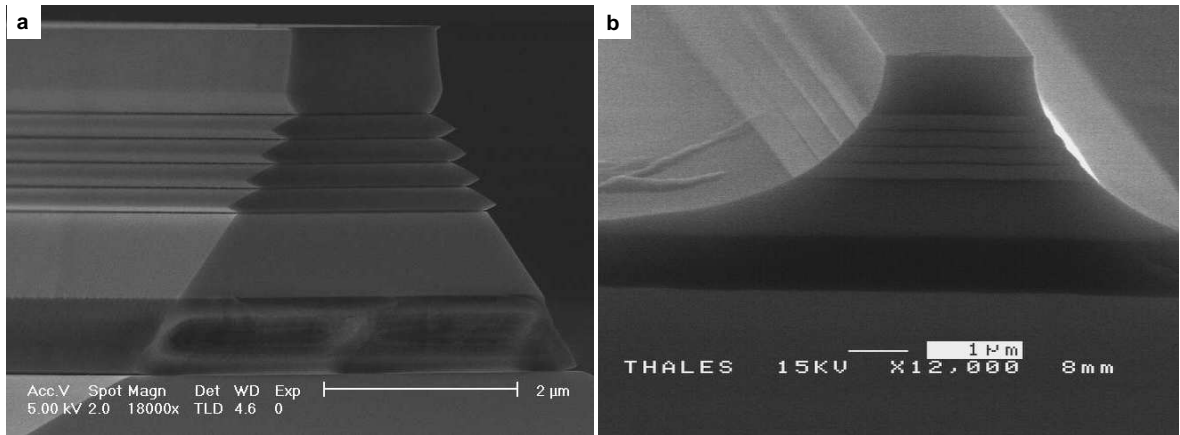


FIGURE 2.6 – Images MEB de guides d'ondes : a) gravé avec une solution à base de H_2SO_4 (d'après [2]), b) gravé avec une solution à base de CrK .

motif plus étroit permet une réduction du temps d'oxydation. La figure 2.6a illustre un tel guide. On constate une légère sélectivité de la gravure : les couches plus riches en Al sont un peu plus gravées. Cela n'a pas de conséquences sur les pertes car cette forme en dents de scie est invariante dans la direction de propagation, n'entraînant donc pas de transfert d'énergie d'un mode guidé à un autre.

La solution $H_2SO_4 : H_2O_2 : H_2O$ a ensuite été substituée par une solution plus anisotrope et moins sélective : $HBr : CH_3COOH : Cr_2K_2O_7$, dite solution 1 : 1 : 1. L'emploi

de cette dernière a permis une légère réduction de la rugosité des flancs de 3 vers 2 nm rms (mesurée au microscope à force atomique). De plus, on constate de façon qualitative une meilleure homogénéité de gravure avec la solution 1 :1 :1 (cf. figure 2.6b). Toutefois cette solution est délicate à manipuler (durée de vie courte, évolution rapide du comportement de gravure, ...) et les résultats de la gravure peuvent être variables.

2.2.2 Oxydation sélective des guides d'ondes

En 1978, Tsang oxyde pour la première fois une surface d'AlAs par voie humide et thermique [57]. Toutefois cet oxyde se révèle peu stable et se détériore avec le temps. En 1990, Dallesasse cherche à accélérer le processus d'oxydation de couches enterrées d'AlAs [4] ; pour cela il s'oriente vers un procédé élaboré par Frosch et Derik en 1957 pour l'oxydation du silicium [58]. L'oxyde obtenu, stable dans le temps [5], sera ensuite très étudié au cours des années 90 pour son utilisation dans la filière des semi-conducteurs III-V.

L'oxyde d'aluminium, communément appelé AlOx, obtenu par oxydation latérale humide présente, un grand nombre de propriétés intéressantes :

- il est stable d'un point de vue chimique, contrairement à l'oxyde obtenu par hydrolysatation atmosphérique, et peut servir de couche de protection [5],
- il est obtenu de façon sélective, c'est-à-dire que les couches adjacentes en GaAs et en $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ ne sont pas oxydées par voie latérale humide [5],
- c'est un isolant électrique, bénéficiant ainsi aux dispositifs actifs pour le confinement électrique,
- son indice de réfraction est très faible par rapport à celui de l'AlAs [42, 48, 49].

Ces propriétés ont bénéficié à la filière III-V sur de nombreux plans :

- obtention de VCSELs à très faibles courants de seuil [59] et avec de meilleurs rendements [60],
- utilisation comme oxyde de grille dans la réalisation de transistors MOS à effet de champ [61],
- réalisation de miroirs de Bragg de haute réflectivité GaAs/AlOx [62],
- fabrication de cristaux photoniques [63] et de microlentilles [64],
- confinement latéral dans des cavités VCSELs [65, 66],
- augmentation de la biréfringence de forme dans les dispositifs GaAs/AlAs pour l'optique non-linéaire [7, 34].

Nous présentons dans la suite les principales caractéristiques de l'oxydation latérale humide, étape indispensable à la réalisation de notre dispositif.

Principes de l'oxydation latérale humide de l'AlGaAs

Il est possible d'oxyder sélectivement des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ à forte concentration en Al dans une structure multicouche. Ce processus se fait par les flancs de la structure, non pas par la surface. Il est donc nécessaire de découvrir préalablement les couches que l'on souhaite oxyder. C'est pour cela que nous gravons les guides d'ondes avant l'étape d'oxydation, et que la gravure découvre complètement le cœur multicouche.

Cette oxydation se fait dans une enceinte à haute température (300 à 600°C) et à pression ambiante. Un flux de vapeur, dont la température se situe entre 70 et 95°C, est transporté par un gaz neutre (N_2 le plus souvent) à travers l'enceinte. Les espèces oxydantes diffusent à partir des flancs de la structure et transforment l' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ en AlOx. Selon les conditions d'oxydation, l'AlOx est soit amorphe, soit composé d'alumine polycristalline entourée d'une gaine amorphe¹⁷.

Les couches à forte teneur en Al s'oxydent facilement en raison de la réactivité de l'Al avec l'oxygène (ou OH) issu de la vapeur d'eau. L'As produit aussi le composé As_2O_3 , et peut réagir avec l'hydrogène pour former AsH_3 . Ces deux derniers composés tendent à s'évaporer facilement hors de l'AlOx [70]. Les réactions chimiques proposées pour expliquer l'oxydation latérale humide sont les suivants [71] :

1. $2\text{AlAs} + 6\text{H}_2\text{O}_{(g)} \Leftrightarrow \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{As}_2\text{O}_{3(l)} + 6\text{H}_2$
2. $\text{As}_2\text{O}_{3(l)} + 3\text{H}_2 \Leftrightarrow 2\text{As} + 3\text{H}_2\text{O}_{(g)}$
3. $\text{As}_2\text{O}_{3(l)} + 6\text{H}_2 \Leftrightarrow 2\text{AsH}_3 + 3\text{H}_2\text{O}_{(g)}$

Lors du processus d'oxydation sèche, l' Al_2O_3 est obtenu par réduction de l'oxygène O ou O_2 en O^{2-} . Dans le cas de l'oxydation humide, en revanche, l'oxygène est déjà dans cet état d'oxydation au sein de la molécule d'eau. L'agent oxydant n'est donc

17. Ces deux structures sont deux étapes successives de l'oxydation [67] et correspondraient à des cinétiques différentes. L'origine de cette différence n'est pas résolue car la cinétique d'oxydation dépend de nombreuses variables parmi lesquels : les paramètres du processus d'oxydation, le taux d'Al [44, 68] et l'épaisseur [44] des couches oxydées, l'orientation cristalline [69], ...

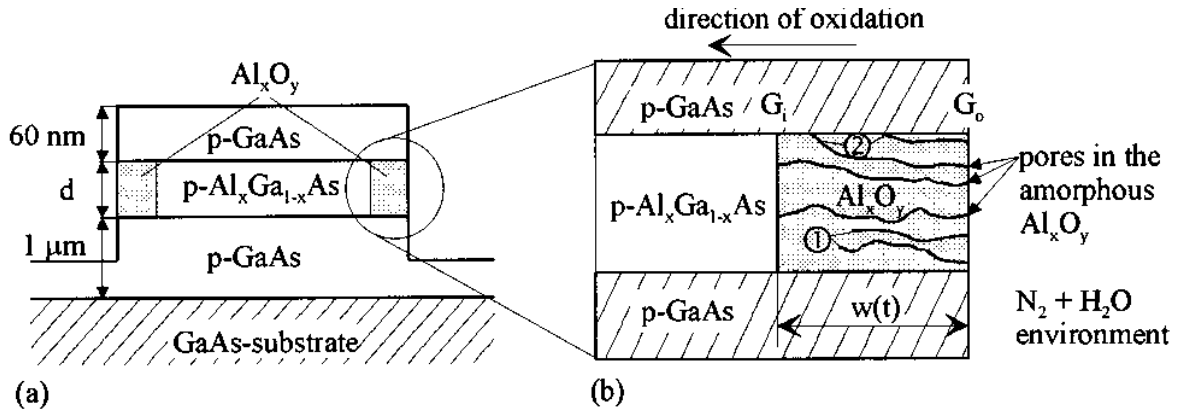


FIGURE 2.7 – Progression du front d'oxydation grâce au transport des espèces oxydantes à travers l'oxyde déjà formé : a) position du front d'oxydation au sein de la couche d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, b) schématisation des canaux de transport des espèces chimiques, où 1 et 2 sont des pores respectivement bloqués dans l'oxyde et à une interface (d'après [72]).

pas l'oxygène mais l'hydrogène présent sous forme du proton H^+ . L'oxydation de AlAs forme alors Al_2O_3 *via* la réduction du proton en atome H, et produit le composé As_2O_3 (réaction 1). Ce dernier entraîne la production d'espèces très volatiles contenant l'As : As et AsH_3 (réactions 2 et 3). L'évacuation des produits arséniés est indispensable à l'avancement du front d'oxydation au sein d'une couche d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

L'oxydation s'appuie sur les mécanismes de diffusion dans la partie déjà oxydée de la couche d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. Toutefois, le mouvement thermique des ions O^{2-} ou des molécules O_2 et OH est trop faible, dans la gamme de température à laquelle se fait l'oxydation, pour permettre à ces espèces de diffuser à travers le réseau cristallin. La progression du front d'oxyde se ferait donc grâce au va-et-vient des espèces oxydantes et des produits de réaction, soit à l'interface AlOx/semi-conducteur, soit *via* les joints de grains cristallins d' Al_2O_3 comme l'illustre la figure 2.7 [72].

Au cours de la progression de l'oxyde, des canaux permettant le transport des espèces oxydantes et des produits de la réaction sont créés. Le front d'oxydation avance le long de ces pores en faisant pénétrer les molécules d'eau ou les ions O^{2-} , mais on constate après des temps longs que ces pores ne progressent plus, ni dans l'oxyde, ni aux interfaces. On trouve dans la littérature plusieurs tentatives d'explication de ce phénomène, comme par exemple l'obturation des pores de l'oxyde par l'oxygène [45],

ou par un blocage induit par l'accumulation des produits de la réaction de type As_2O_3 aux interfaces [73].

Phénomène de contraction des couches oxydées

Un problème important, évoqué plus tôt (section 2.1.2), est qu'au cours du procédé d'oxydation latérale humide, se produit une réduction volumique de la couche oxydée, se traduisant par une diminution de son épaisseur. Au niveau des propriétés optiques, cela se traduit par un déplacement de la courbe d'accord de phase et, en particulier, de la longueur d'onde de dégénérescence.

Ce phénomène peut s'expliquer par la réduction du volume, $a_0^3/4$, occupé par atome d'aluminium dans $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ($a_0=2.85 \text{ \AA}$), phase majoritairement identifiée dans l'AlOx, par rapport à celui dans l'AlAs ($a_{\text{equiv}}=3.57 \text{ \AA}$). Dans ces conditions le facteur de contraction théorique est d'environ 20 % entre l'AlOx et l'AlAs. Cependant les valeurs reportées les plus courantes se situent autour de 10-12 % [74], probablement car l'AlOx est entouré d'une gaine amorphe. En effet, dans le cas purement amorphe, le volume de l'aluminium dans $\text{Al}(\text{OH}_3)$ est $(a_0=3.49 \text{ \AA})^3$, et aucune contraction des couches n'est observée [75].

Principales caractéristiques de l'oxydation latérale humide

La cinétique d'oxydation des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ dépend d'un grand nombre de variables. On peut citer les conditions d'oxydation (température du four et de la vapeur, nature et débit du gaz porteur), la concentration x d'Al, l'épaisseur des couches, leur dopage et leur structure initiale. Ce sont autant de paramètres sur lesquels on peut jouer pour contrôler l'oxydation. On reporte ci-dessous les principales caractéristiques.

Conditions d'oxydation La figure 2.8a montre la vitesse d'oxydation de couches d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ de 84 nm d'épaisseur en fonction du débit d'azote pour deux températures différentes de la vapeur d'eau [76]. On constate que jusqu'à 3 l/min d'azote (dans la configuration spécifique du four utilisé pour cette expérience) la vitesse d'oxydation augmente linéairement avec le débit, pour finalement atteindre un plateau de saturation. Par ailleurs, on remarque aussi que l'oxydation se fait plus rapidement lorsque la

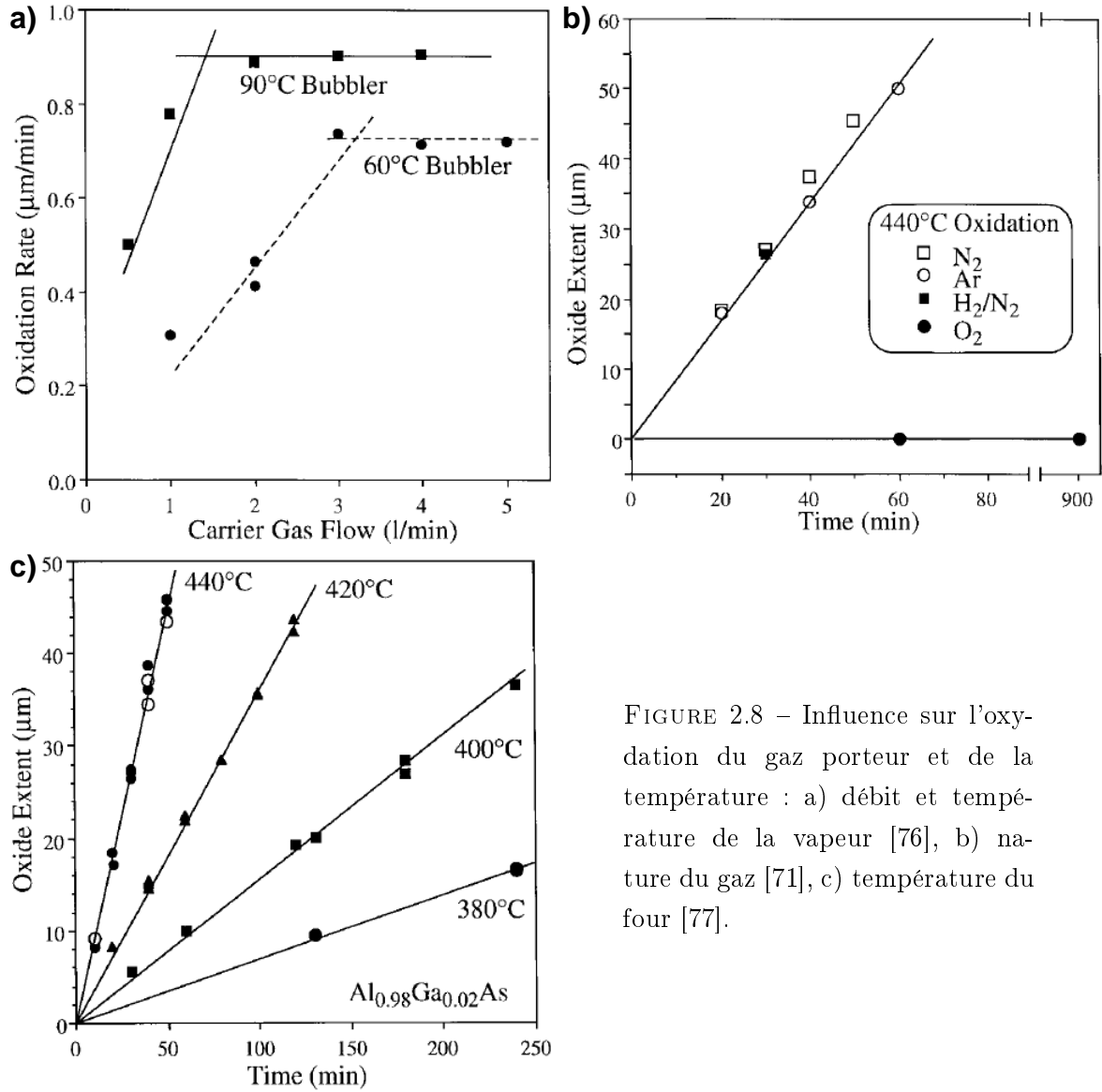


FIGURE 2.8 – Influence sur l'oxydation du gaz porteur et de la température : a) débit et température de la vapeur [76], b) nature du gaz [71], c) température du four [77].

température de la vapeur est plus élevée.

Une comparaison de l'oxydation en fonction de la nature du gaz porteur est visible sur la figure 2.8b. La vitesse d'oxydation varie très peu selon que l'on utilise de l'azote, de l'argon ou un mélange H_2/N_2 . En revanche, l'utilisation d'oxygène supprime tout effet d'oxydation car il réagit avec l'hydrogène formé lors de la première réaction impliquée dans le mécanisme d'oxydation. Les deux autres réactions ne peuvent donc plus se faire, et l' As_2O_3 ne peut plus être évacué, bloquant ainsi l'avancement du front d'o-

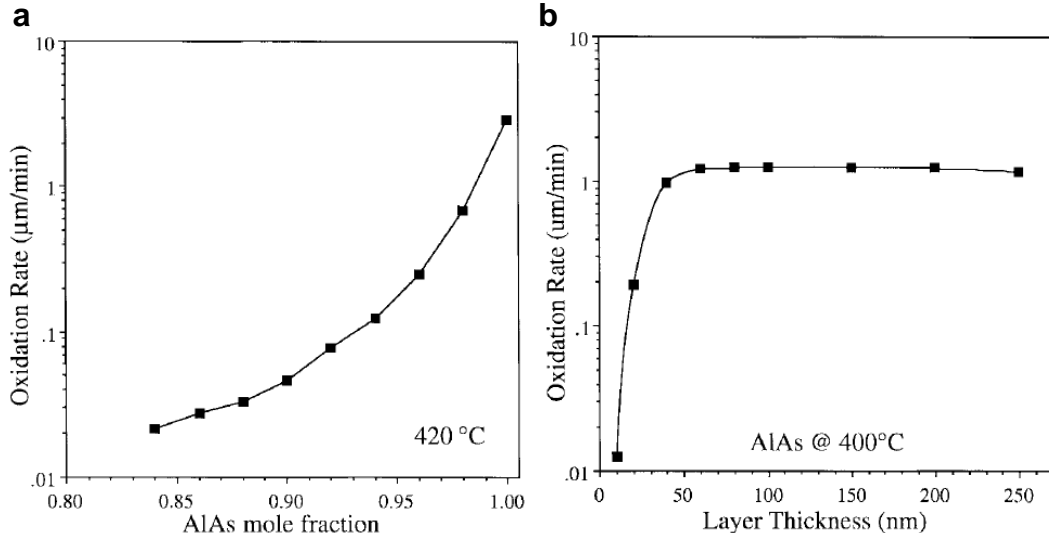


FIGURE 2.9 – Vitesse d’oxydation en fonction a) de la concentration d’Al et b) de l’épaisseur des couches, d’après [46].

xydation.

La dépendance en température de l’oxydation est présentée sur la figure 2.8c [77]. Le front progresse de façon linéaire dans le temps, et d’autant plus vite que la température du four est importante.

Teneur en Al L’oxydation est extrêmement dépendante de la concentration en Al de la couche à oxyder, comme le montre la figure 2.9a. Alors que le taux d’Al varie de 84 à 100 %, la vitesse d’oxydation augmente de deux ordres de grandeur [78]. En particulier, pour des concentrations d’Al inférieures à 70 %, la cinétique d’oxydation est tellement faible ($v_{oxy} < 5$ nm/min à 420 °C) que l’on considère qu’il n’y a plus de phénomène d’oxydation latérale humide. Cette dépendance est un très grand degré de sélectivité de l’oxydation entre des couches d’ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ de concentration variable et nous permet, par exemple, d’oxyder le cœur multicouche de nos guides d’ondes, sans modifier les couches confinantes.

Épaisseur des couches L'épaisseur de la couche à oxyder influence aussi la vitesse d'oxydation [44] comme on le voit sur la figure 2.9b pour une couche d'AlAs entourée de GaAs. De 250 à 60 nm, le front d'oxydation progresse à vitesse constante. En dessous de cette limite, la vitesse d'oxydation chute drastiquement. Ainsi elle est deux ordres de grandeur plus lente pour une couche de 10 nm que pour une couche de 60 nm ou plus. En dessous de 10 nm, l'oxydation ne semble plus se produire [44]. Il est probable que les processus de diffusion des espèces oxydantes et d'évacuation des produits volatiles des réactions, soient perturbés dans les couches fines. Cela aurait pour conséquence un ralentissement de l'oxydation. En-dessous de 10 nm, le front d'oxydation est bloqué par la taille des grains qui est de l'ordre de 8 nm [79], ne laissant plus que les interfaces AlOx/semi-conducteur comme canaux de diffusion.

Structure La structure et la composition des couches voisines affectent aussi le processus d'oxydation. Il a en effet été montré qu'une couche d'AlAs entourée de GaAs, ou une couche d'AlAs entourée d' $\text{Al}_{0.72}\text{Ga}_{0.28}\text{As}$, ne s'oxydaient pas à la même vitesse [44]. Nous avons pu faire la même constatation puisque, dans nos structures, les couches d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ entourées de GaAs de part et d'autre s'oxydent moins rapidement que celles entourées d'une couche de GaAs et d'une d' $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$. Enfin, Pickrell a montré que l'utilisation d'alliage digital permettait d'augmenter la vitesse d'oxydation par rapport à son équivalent standard [80].

Mise en œuvre expérimentale

Nous décrivons ici le système d'oxydation mis en place, et le protocole suivi lors de cette thèse. Le système d'oxydation est schématisé sur la figure 2.10. Il se compose :

- d'une ligne d'arrivée d'azote gazeux dont le débit est contrôlé au moyen d'un débit-mètre (pour N_2) ; le flux est réglable de 0 à 5 l/min,
- d'un bain-marie de glycol permettant de générer de la vapeur d'eau déminéralisée contenue dans un erlenmeyer ; l'azote pénètre dans l'eau et remonte en surface où il entraîne la vapeur par une sortie,
- d'une ligne de transport de la vapeur, chauffée à l'aide d'un cordon résistif afin d'éviter toute condensation de la vapeur à l'intérieur,
- d'un four permettant de chauffer l'échantillon placé sur un plateau dans un tube en quartz ; la vapeur sature l'environnement de l'échantillon et circule dans ce

- tube en entraînant les produits arséniés avec elle,
- d'une ligne de transport entraînant la vapeur et les produits arséniés sous une hotte aspirante.

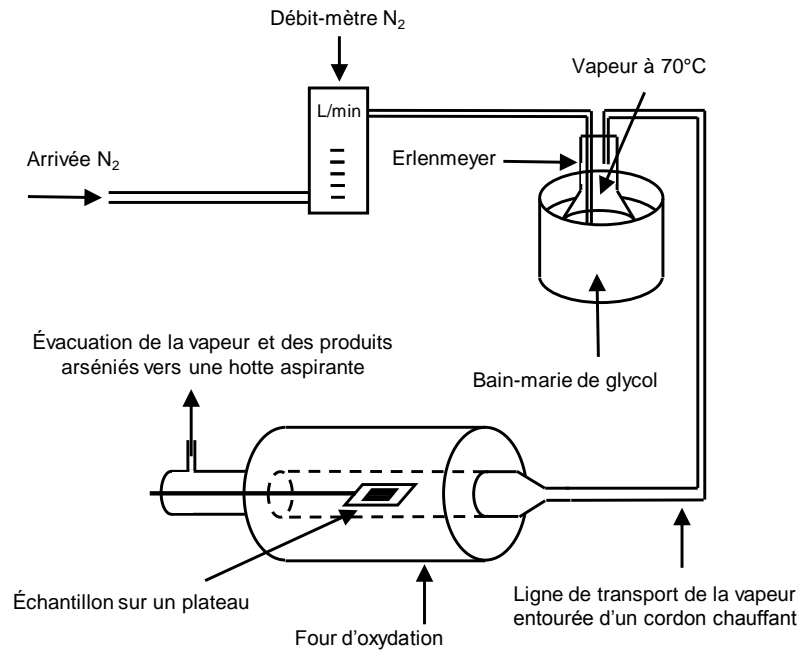


FIGURE 2.10 – Représentation schématique du système d'oxydation.

Le protocole d'oxydation suivi est :

1. génération de la vapeur à la température désirée ($70^\circ C$ en général) et mise à température du four d'oxydation ($\approx 400-440^\circ C$),
2. insertion de l'échantillon dans le tube en quartz,
3. mise à l'équilibre de la température du four suite à l'ouverture (≈ 5 min.),
4. ouverture du débit-mètre et libération du flux de vapeur à l'intérieur du four pendant toute la durée de l'oxydation,
5. fermeture du débit-mètre pour l'arrêt de l'oxydation et retrait immédiat de l'échantillon.

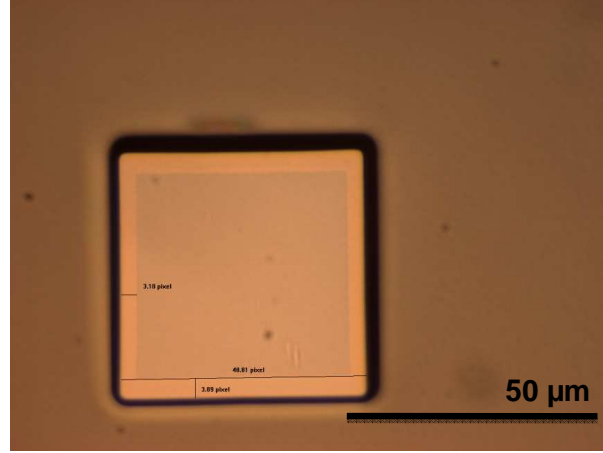


FIGURE 2.11 – Contrôle de l'oxydation par l'observation d'un *mesa* : les bords oxydés ont un contraste différent du centre non oxydé.

Suite à l'oxydation il est possible de contrôler le résultat au microscope optique. En effet, une conséquence de l'oxydation est l'augmentation de la réflectivité en surface. Nous avons donc dessiné des *mesas* de $50\ \mu\text{m}$ de côté, répartis entre les guides d'ondes. Après l'oxydation on constate facilement une différence de contraste entre leurs bords oxydés et leur centre non oxydé (cf. figure 2.11). On peut ainsi facilement vérifier que l'oxydation a pénétré sur une profondeur correspondant à la largeur des guides. Néanmoins, en raison d'une grande susceptibilité aux différents paramètres de l'oxydation latérale humide (cf. section 2.2.2), il arrive que le résultat du process soit différent de celui attendu. Une meilleure maîtrise du résultat passe inévitablement par un contrôle *in-situ* de l'oxydation. Récemment, une équipe du LAAS à Toulouse a développé une telle technique. Elle est basée sur la visualisation directe de l'avancée du front d'oxydation au moyen d'une caméra CCD sous une illumination filtrée par un monochromateur [81, 82].

2.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté la démarche de conception de deux structures pour la conversion de fréquence : l'une avec une longueur d'onde à la dégénérescence à $\lambda_p = 1.064\ \mu\text{m}$ (ART235) et l'autre à $\lambda_p = 1.030\ \mu\text{m}$ (ART237). Pour cela, nous avons cherché les conditions permettant de compenser la dispersion des guides par la biréfrin-

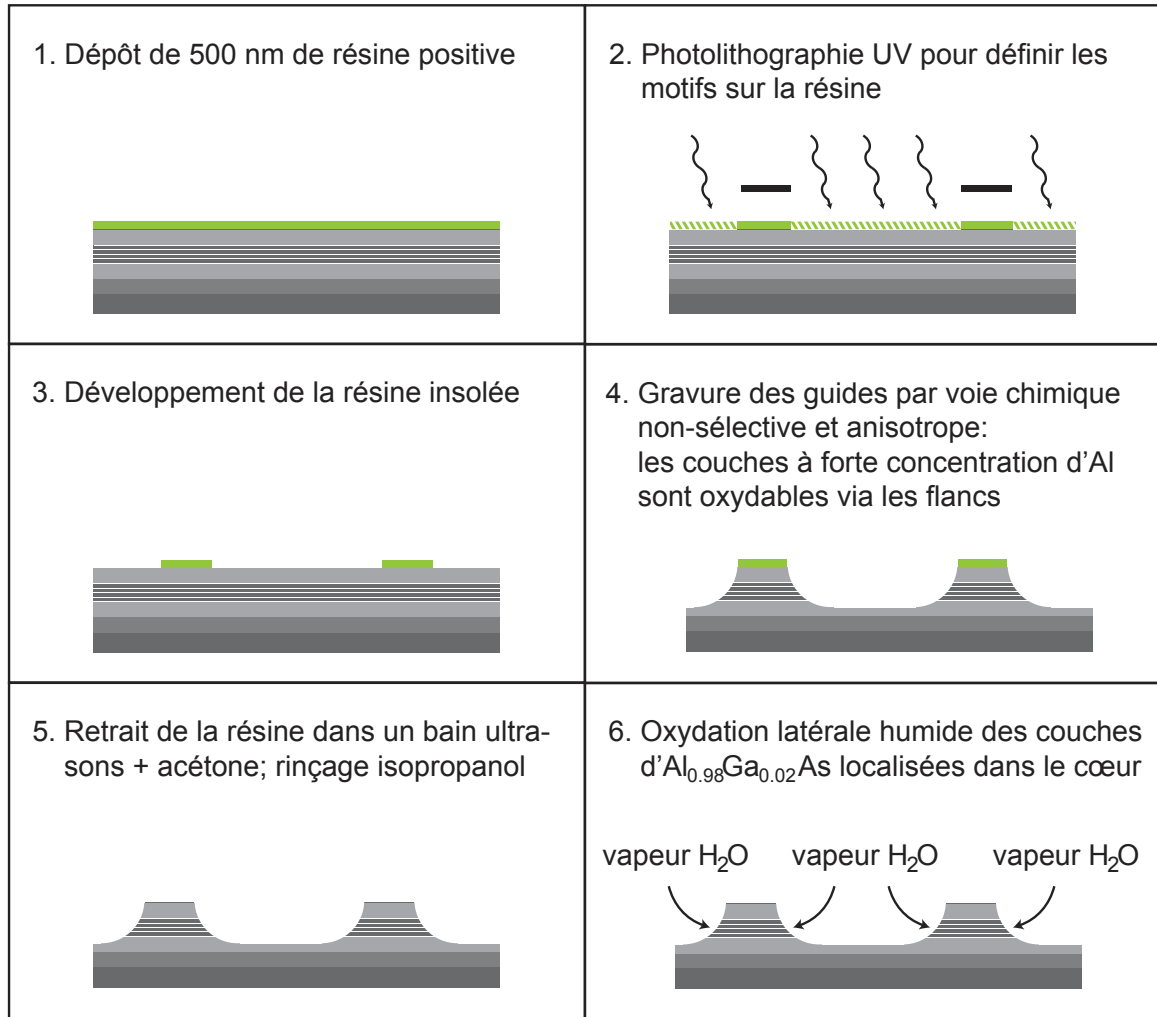


FIGURE 2.12 – Etapes technologiques du procédé d'élaboration des guides d'ondes GaAs/AlOx.

gence de forme. Nous avons insisté sur les multiples contraintes dont nous avons tenu compte pour leur design, parmi lesquelles : la réduction du nombre de modes guidés et la maximisation de leur recouvrement spatial, et la présence de couches d'AlOx dans le cœur guidant.

Nous avons ensuite montré que les étapes technologiques s'enchaînant lors de la fabrication des guides d'ondes, peuvent introduire des variations de la longueur d'onde

à la dégénérescence, mais aussi réduire le gain paramétrique. En tenant compte de ces incertitudes, nous sommes néanmoins en mesure de pouvoir générer des signaux continus dans la plage 1.2-4 μm , à l'aide des deux structures conçues.

Nous avons aussi présenté les trois étapes majeures de la fabrication de nos guides d'ondes pour l'optique non-linéaire : la croissance par EJM, la gravure et l'oxydation sélective. Nous avons établi les avantages et inconvénients des solutions adoptées pour chacune de ces étapes, et décrit leurs principales caractéristiques. Sur la figure 2.12 nous illustrons les étapes majeures. Nous insistons en particulier sur la sensibilité des étapes de gravure et d'oxydation, dont le bon déroulement est critique pour les bonnes performances des guides. Leur rapprochement géographique dans la nouvelle salle blanche du laboratoire MPQ, devrait lever, nous l'espérons, de nombreuses contraintes.

La conséquence la moins désirable de l'oxydation latérale humide est l'augmentation des pertes de propagation de nos guides d'ondes. Elles passent en effet de 0.1 cm^{-1} avant cette étape à 0.5 cm^{-1} après. Dans le but de pouvoir les réduire nous avons initié une étude par microscopie électronique en transmission, afin de comprendre quels sont les effets de l'oxydation sur la microstructure du dispositif. Cette étude, qui constitue le cœur de cette thèse, est une étape de plus vers la recherche l'obtention de l'oscillation paramétrique.

Chapitre 3

Étude des couches d'AlOx par microscopie électronique en transmission

La conséquence la plus gênante de l'étape d'oxydation est l'augmentation des pertes de propagation des guides d'ondes. Elles passent en effet de 0.1 cm^{-1} avant, à 0.5 cm^{-1} après l'oxydation [9]. Cette étape technologique est donc la principale source de pertes dans nos guides GaAs/AlOx. En 2002, Venugopal Rao *et al.* ont observé de la diffusion Rayleigh dans ce type de guides. L'associant à de la diffusion surfacique, ils ont supposé qu'elle avait pour origine la rugosité des interfaces GaAs/AlOx [12]. Au cœur de cette thèse se trouve donc une étude par microscopie ayant pour but de déterminer la rugosité de ces interfaces. Les techniques en champ proche telles que la microscopie à force atomique ou la microscopie par effet tunnel n'étaient pas adaptées dans notre cas puisqu'elles ne permettent que l'évaluation de la rugosité de la surface et des flancs des guides, et non celles d'interfaces enterrées, au sein de la structure multicouche. Il était donc nécessaire d'adopter un outil permettant l'observation en section transverse. En tenant compte de la taille des détails que l'on cherchait à observer (de l'ordre de quelques monocouches atomiques), la microscopie électronique en transmission (MET) nous est apparue comme la méthode la mieux adaptée mais elle projette sur deux dimensions une information contenue dans trois dimensions, ce qui nécessite une interprétation poussée des images. La MET nous a aussi permis de rechercher d'éventuelles autres sources de pertes liées à l'oxydation, telles que la présence de centres absorbants

ou de centres de diffusion volumiques.

Dans ce chapitre nous expliquons tout d'abord de façon non exhaustive le principe de fonctionnement du microscope électronique en transmission, puis nous nous focalisons sur les techniques mises en œuvre au cours de cette thèse. Le fait que nos échantillons soient sous forme de guides d'ondes nous a contraint de tester différentes méthodes de préparation des lames minces, adaptées à l'observation au MET. Nous présentons donc cette étude comparative. Enfin nous présentons les résultats issus de l'observation de nos échantillons au MET. Nous montrons en particulier que l'étape d'oxydation latérale humide est responsable de la détérioration des interfaces dans le cœur de la structure. Nous quantifions la rugosité des interfaces et analysons les différentes modifications induites par l'oxydation.

3.1 Fonctionnement du MET

L'idée d'un microscope utilisant les électrons comme moyen de construction d'une image est introduite pour la première fois en 1932 par Max Knoll et Ernst Ruska [83]. Le principe consiste à faire passer un faisceau d'électrons à travers un échantillon suffisamment mince. Une série de lentilles magnétiques permet la mise en forme du faisceau et la projection de l'image de l'échantillon sur un écran fluorescent, qui transforme l'image électronique en une image optique. La limite de résolution du microscope, c'est-à-dire la plus petite distance en dessous de laquelle deux points voisins ne sont plus distingués, est donnée par l'expression suivante :

$$d = \frac{\lambda}{2n \sin \alpha} = \frac{\lambda}{2NA} \quad (3.1)$$

où NA désigne l'ouverture numérique de la lentille objectif, n est l'indice de réfraction en sortie d'objectif (et vaut 1), α est la moitié de l'ouverture angulaire de l'objectif et λ (en nm) est la longueur d'onde des électrons donnée par la loi de de Broglie :

$$\lambda \approx \frac{1.22}{\sqrt{E}} \quad (3.2)$$

avec E , l'énergie des électrons en eV. La tension d'accélération standard des électrons dans les MET utilisés en science des matériaux est de 200 kV, on en déduit donc que la limite de résolution théorique est de l'ordre de 1.5 pm, ce qui est de 2 ordres de grandeur plus petit que le paramètre de maille cristalline de n'importe quel matériau.

En réalité, la limite de résolution pratique de la plupart des MET d'aujourd'hui est de l'ordre de l'ångström (100 pm), en raison des aberrations des diverses lentilles.

3.1.1 Interactions électron-matière

C'est la nature à la fois corpusculaire et ondulatoire des électrons qui confère au MET sa puissance en tant que moyen d'observation des matériaux. L'énergie des électrons étant de quelques centaines de keV, elle leur permet d'interagir avec les différentes couches électroniques et noyaux de la matière constituant l'échantillon. À ces énergies la longueur d'onde des électrons, donnée par l'équation 3.2, est de l'ordre de quelques pm soit une fraction du paramètre de maille. L'aspect ondulatoire des électrons se manifeste alors par le phénomène de diffraction par le réseau cristallin périodique.

Le MET permet également de produire un large spectre de radiations secondaires, issues de l'interaction des électrons avec le matériau irradié lors de processus inélastiques. Une partie de ces signaux secondaires est utilisée en microscopie électronique analytique, et nous renseigne sur la nature chimique de l'échantillon. D'autre part, les électrons interagissent dans des processus élastiques qui interviennent dans la formation d'images. Tous ces processus sont schématisés sur la figure 3.1.

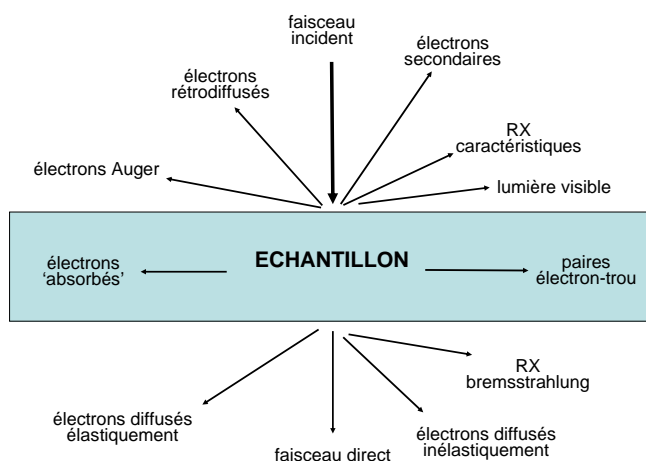


FIGURE 3.1 – Signaux générés par l'interaction électron-matière dans un MET.

Quel que soit le processus d'interaction mis en jeu pour obtenir une information, il est important de noter que les électrons sont fortement absorbés par la matière. C'est d'ailleurs le principal facteur limitant des MET, et cela impose de réduire l'épaisseur des échantillons à moins de 100 nm voire 40 ou 50 nm pour certaines applications (cf. section 3.3). Cette épaisseur critique dépend évidemment de l'énergie incidente des électrons et de la nature de l'échantillon.

Processus élastiques

Lorsque les électrons interagissent avec l'échantillon sans perdre d'énergie on dit qu'ils participent à des processus élastiques. L'électron est une particule de faible masse (9.11×10^{-31} kg) et chargée négativement (-1.6×10^{-19} C). En tant que tel, il peut être facilement dévié de sa trajectoire par d'autres particules chargées (électrons ou noyau d'un atome) via l'interaction coulombienne. On parle de processus de diffusion.

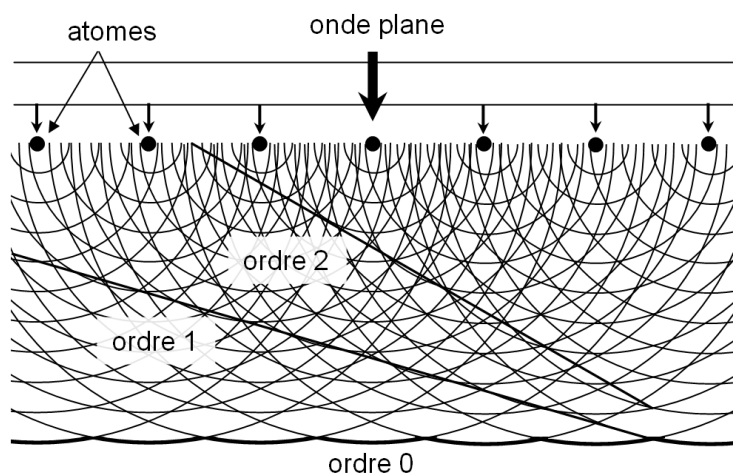


FIGURE 3.2 – Faisceaux direct (ordre 0) et diffractés (ordres supérieurs) générés par l'interaction d'une onde plane avec un plan cristallin.

Un cas particulier de la diffusion élastique a lieu lorsque les électrons, considérés comme une onde, traversent un échantillon cristallin, où la répartition des atomes est périodique. Comme le suggère la figure 3.2, l'onde électronique incidente, considérée

plane et de longueur d'onde λ , rencontre un réseau 1D de centres diffusants. Chaque atome agit comme une nouvelle source émettant une onde de même longueur d'onde λ . Toutes ces ondes interfèrent les unes avec les autres de façon constructive (ondes en phase) ou destructive (ondes en opposition de phase). C'est la diffraction de Bragg. En sortie de l'échantillon, les électrons forment deux types de faisceaux : un faisceau parallèle à l'axe optique du microscope, dit faisceau direct (correspondant à l'ordre 0 sur la figure 3.2), et un ensemble de plusieurs faisceaux constituant la diffraction (correspondant aux ordres supérieurs) formant un angle $2\theta_B$ avec le faisceau incident (angle de Bragg) défini par la loi de Bragg :

$$2d \sin \theta_B = m\lambda \quad (3.3)$$

où m est un entier qui représente l'ordre de la diffraction, d est la distance entre deux plans cristallins parallèles (définis par les indices de Miller hkl) et θ_B est l'angle de Bragg formé par la famille de plans hkl et les faisceaux incident et réfléchi (cf. figure 3.3).

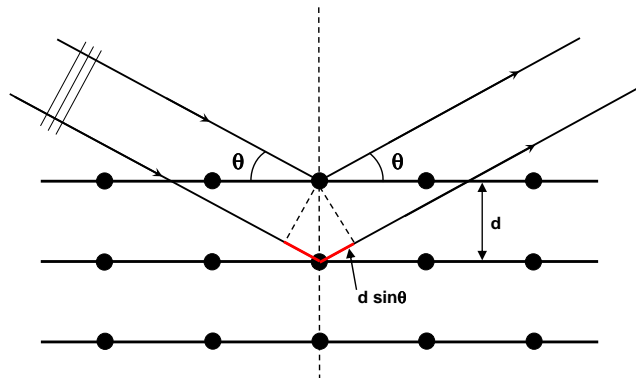


FIGURE 3.3 – Représentation schématique de la loi de Bragg.

Les électrons élastiques qui ressortent par la face d'entrée du cristal sont dits rétro-diffusés. Leur nombre dépend de l'orientation et de la nature du cristal. Sur certains microscopes, un système de balayage et un détecteur adéquat permettent de faire de l'imagerie avec ces électrons rétrodiffusés.

Processus inélastiques

Historiquement les MET conventionnels n'utilisaient que les deux signaux élastiques : faisceau direct et faisceaux diffractés. Toutefois les processus inélastiques entre les électrons et la matière sont très nombreux, et analyser les signaux en résultant fait aujourd'hui pleinement partie des fonctions remplies par les MET. Parmi ces différents processus, mentionnons l'émission de rayons X, les électrons secondaires et les électrons Auger que l'on présente succinctement ci-dessous.

Les électrons incidents (et dans une moindre mesure les électrons rétro-diffusés) peuvent exciter des électrons de l'échantillon au-dessus du niveau de Fermi. Ces électrons ont un libre parcours moyen très réduit (de l'ordre de quelques nanomètres), et ne peuvent être collectés que s'ils sont émis proche de la surface de l'échantillon. Dans le cas où un électron d'un niveau électronique supérieur vient combler le trou laissé par un électron secondaire, il y a émission d'un photon X. Ce processus doit respecter le principe de Pauli. Ce photon peut exciter un électron de la bande de valence et l'éjecter : on parle d'électron Auger.

3.1.2 Architecture d'un microscope électronique en transmission

La compréhension du fonctionnement d'un MET passe nécessairement par la connaissance de son architecture. Comme pour un microscope classique, trois composants constituent un MET : un système d'éclairement, un étage objectif et un système d'imagerie. Le système d'éclairement est constitué d'une source émettrice d'électrons et de lentilles condenseurs, dont le but est de mettre en forme le faisceau qui éclaire l'échantillon.

L'étage objectif est le cœur du microscope. C'est à ce niveau, dans l'entrefer d'une bobine magnétique d'une taille ne dépassant en général pas 1 cm, qu'est placé l'échantillon et qu'est formée la première image. La qualité de cette première image gouverne la résolution de l'image finale, ce qui fait des lentilles objectif les lentilles les plus importantes.

Le système d'imagerie comprend plusieurs lentilles dont le but est de grossir l'image produite par la lentille objectif et de la projeter sur l'écran d'observation. On peut classer les lentilles de cet étage en deux catégories. Celles qui grossissent l'image sont dites lentilles intermédiaires et lentilles de diffraction ; celles qui projettent l'image sont dites

lentilles de projection.

Toutes les lentilles auxquelles nous faisons référence ici ne sont pas des lentilles optiques mais magnétiques. Leur mode de fonctionnement est décrit en annexe C mais gardons à l'esprit que les règles de l'optique géométrique restent valables en optique électronique.

Système d'éclairage

Le faisceau d'électrons est produit par un canon à électrons. Celui-ci peut être à émission thermoionique ou à émission de champ. Dans le premier cas (cf. figure 3.4), on chauffe la cathode (un filament de tungstène ou une pointe monocristalline d'hexaborure de lanthane (LaB_6) par exemple) à une température suffisamment élevée pour que les électrons puissent franchir la barrière de potentiel qui les maintient dans le solide. Les électrons arrachés sont attirés par l'anode. Le contrôle de l'émission du canon se fait à l'aide du *wehnelt* dont on peut varier la valeur du potentiel négatif. La zone où sont focalisés les électrons est appelée le *cross-over* et équivaut à la vraie source du microscope. Les électrons issus du *cross-over* sont accélérés par une série d'anodes pour atteindre leur énergie finale.

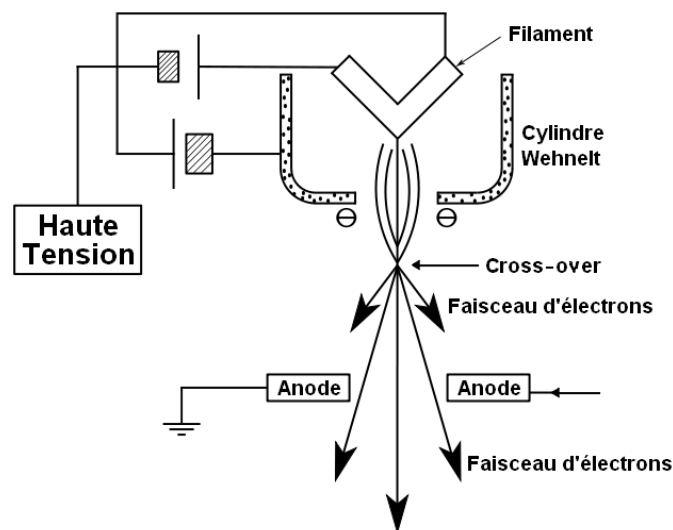


FIGURE 3.4 – Représentation schématique d'un canon à émission thermoionique.

Dans le cas des canons à émission de champ on ne chauffe pas la pointe mais on applique un potentiel très élevé entre le filament et une anode située très près de celui-

ci. Cette différence de potentiel permet l'extraction des électrons avec une dispersion en énergie plus faible que pour les canons à émission thermoionique. De plus, la source est plus brillante. En revanche, la pointe doit être beaucoup plus fine (elle est donc plus fragile et coûteuse) et le vide doit être de meilleure qualité (10^{-8} Pa contre 10^{-2} - 10^{-4} Pa pour l'émission thermoionique).

Le faisceau est par la suite mis en forme à l'aide de lentilles condenseurs nommées C1 et C2 (cf. figure 3.5). La lentille C1 forme une image du cross-over et détermine la taille de la source sur l'échantillon ; c'est ce qu'on appelle le spot size. La lentille C2 permet de régler la convergence du faisceau sur l'échantillon, et donc l'intensité du faisceau. Au niveau de cette lentille se trouve un diaphragme permettant de régler la brillance mais aussi la cohérence du faisceau ce qui, on le verra plus tard, est important pour l'imagerie haute résolution (HR). Il arrive que les lentilles C1 et C2 ne permettent pas de réduire suffisamment la taille de la source sur l'échantillon. Dans ce cas on utilise une troisième lentille C3 dite condenseur-objectif, située entre le diaphragme et l'échantillon (non représentée sur la figure 3.5).

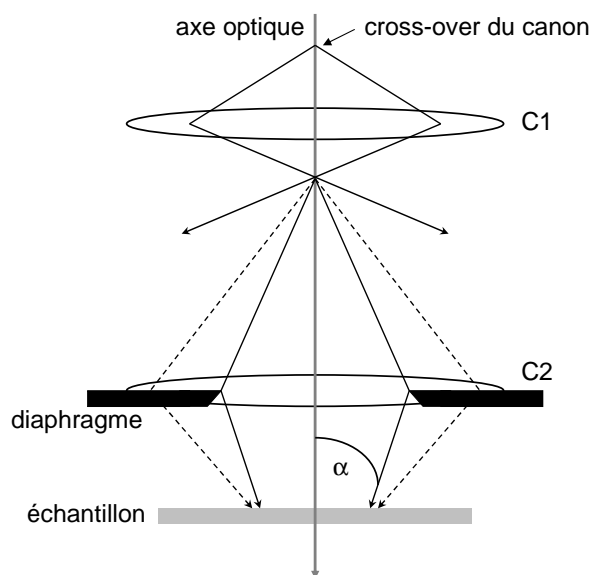


FIGURE 3.5 – Système d'éclairage d'un MET (adaptation de [84]).

Étage objectif

L'étage objectif est le plus important car c'est lui qui produit la première image agrandie de l'objet. L'échantillon se trouve à ce niveau, entre la lentille objectif supérieure et la lentille objectif inférieure en position eucentrique (sans déplacement latéral associé à la rotation) comme on peut le voir sur la figure 3.6. L'espace disponible entre les deux pièces polaires est un facteur critique car il limite la rotation de l'échantillon pour son orientation. De plus l'aberration sphérique C_s de la lentille objectif inférieure dépend de la taille de l'entrefer.

La lentille objectif supérieure est en fait la dernière lentille du système d'illumination et définit la convergence et la taille du faisceau irradiant l'échantillon. La lentille objectif inférieure, plus simplement désignée "lentille objectif", fournit la première image agrandie de l'objet. Le pouvoir de résolution du MET dépend des aberrations de cette lentille, notamment de son coefficient d'aberration sphérique.

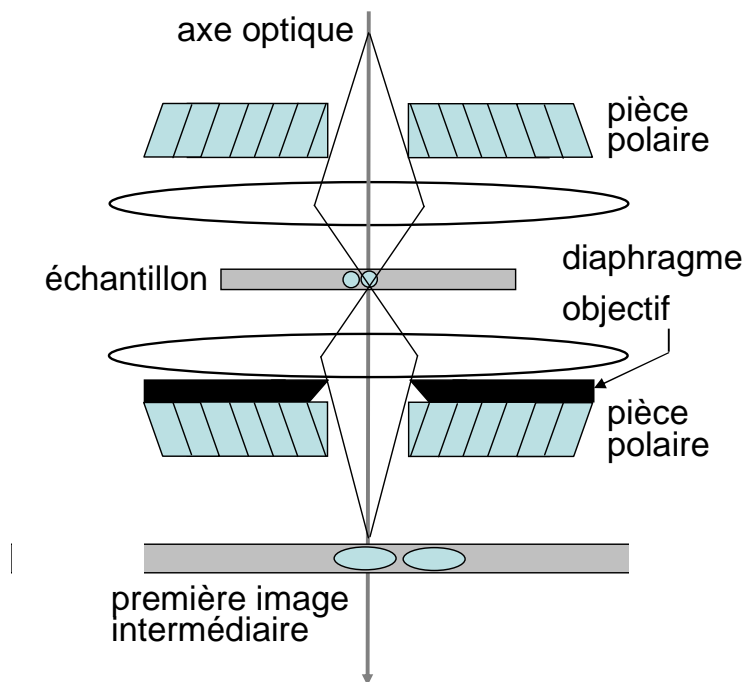


FIGURE 3.6 – Étage objectif dans un MET.

Système d'imagerie

A la sortie de la lentille objectif, les électrons sont répartis dans différents faisceaux qui forment une figure de diffraction dans le plan focal image ; ils sont ensuite recombinaés pour former l'image dans le plan image (cf. figure 3.7).

En mode diffraction (3.7.a), on retire le diaphragme objectif (aussi appelé diaphragme de diffraction) et on insère le diaphragme de sélection d'aire. Ce dernier permet de sélectionner la zone de l'échantillon dont on souhaite voir la figure de diffraction associée. Ensuite, le système de lentilles intermédiaires est ajusté en changeant le courant dans les lentilles, de façon à faire coïncider le plan objet avec le plan focal image de la lentille objectif. Finalement, la figure de diffraction située dans le plan image de la lentille de projection est projetée sur l'écran d'observation par cette dernière, dont le plan image coïncide avec l'écran.

En mode image (3.7.b) on retire le diaphragme de sélection d'aire et on insère un diaphragme de diffraction pour augmenter le contraste de l'image. On modifie le courant des lentilles intermédiaires pour faire coïncider leur plan objet avec le plan image de la lentille objectif. Cette fois la lentille de projection reproduit l'image de l'échantillon sur l'écran.

Il est courant de projeter la figure de diffraction ou l'image de l'échantillon sur une caméra CCD de façon à faire des acquisitions numériques. Nous ne rentrerons pas ici dans le détail de ce sujet, et invitons le lecteur qui souhaite en savoir plus, à se reporter par exemple au chapitre 7 de l'ouvrage de B. Williams et C. Carter [84].

3.2 Techniques de microscopie électronique mises en œuvre

Les nombreux signaux issus des interactions électron-matière dans la colonne d'un microscope électronique ont suscité et suscitent encore un développement technologique important. Aujourd'hui presque tous ces signaux sont détectables et analysables, conférant au MET non plus uniquement la capacité d'observer l'infiniment petit mais aussi d'en analyser les propriétés chimiques, structurales, électroniques...

Dans cette partie, nous présentons les techniques que nous avons mises en œuvre dans le cadre de cette thèse, à savoir : l'imagerie conventionnelle, haute résolution ou filtrée en énergie, ou bien la spectroscopie par pertes d'énergie des électrons.

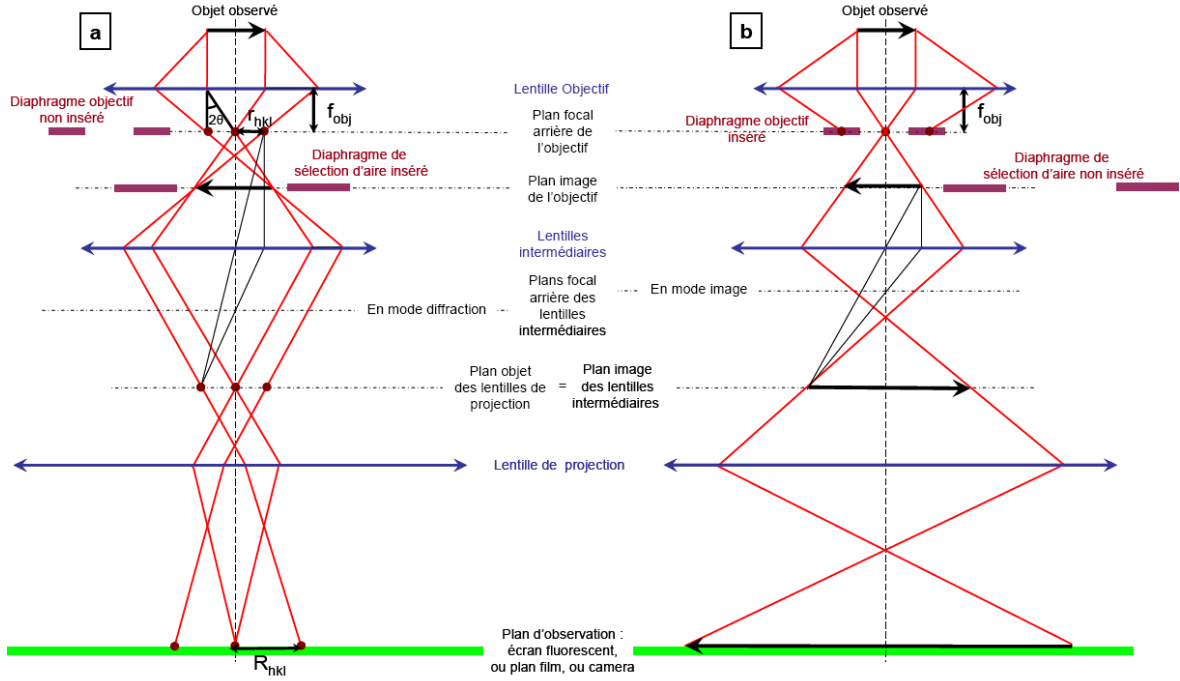


FIGURE 3.7 – Étage d'imagerie d'un MET (d'après [85]).

La description de ces techniques s'inspire des ouvrages de Williams et Carter [84] et de Shindo et Oikawa [86], ainsi que du site internet construit par Florent Houdellier [87], que nous recommandons au lecteur qui souhaiterait approfondir le sujet.

3.2.1 L'imagerie conventionnelle

Lorsque l'on se réfère à l'imagerie conventionnelle on fait référence au contraste en amplitude par opposition au contraste de phase, utilisé en imagerie HR. Le contraste définit une différence d'intensité entre deux zones voisines : $C = \frac{I_2 - I_1}{I_2 + I_1}$. En pratique l'œil humain ne peut distinguer un contraste inférieur à 5%, voire 10%.

La différence d'amplitude dans l'image est liée au fait que l'on retire de celle-ci la contribution des faisceaux diffractés en les bloquant avec le diaphragme objectif. Ce contraste peut être amplifié en sélectionnant un diaphragme plus ou moins petit, qui bloque de la lumière diffuse autour du faisceau transmis. Ce faisant on réduit aussi la

résolution de l'image. Le choix du diaphragme est donc un compromis entre le contraste et la résolution souhaités.

On distingue deux modes d'imagerie conventionnelle : le mode champ clair (BF) et le mode champ sombre (DF) (cf. figure 3.8). Dans le cas du champ clair on sélectionne le faisceau direct pour former l'image, et le contraste permet de distinguer des zones amorphes ou cristallines. Dans le cas du mode champ sombre, on sélectionne uniquement les électrons diffractés dans une direction spécifique. L'image fait alors ressortir les zones cristallines qui ont diffracté les électrons dans la direction sélectionnée. En imagerie conventionnelle c'est donc l'arrangement des atomes (périodique ou non, orienté ou non) qui contribue au contraste.

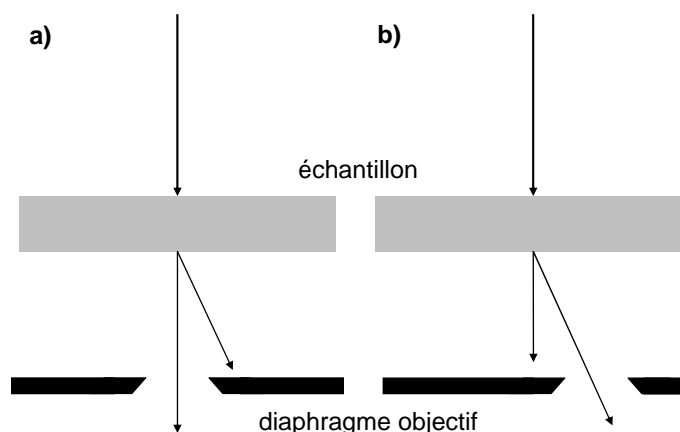


FIGURE 3.8 – Position du diaphragme objectif : a) en mode champ clair, b) en champ sombre.

Toutefois, une autre contribution au contraste apparaît lorsque plusieurs éléments chimiques constituent l'échantillon ou lorsque son épaisseur varie. Lorsque les électrons traversent l'échantillon, ils sont diffusés élastiquement par le noyau des atomes (diffusion Rutherford). Celle-ci est liée à la masse et à l'épaisseur de l'échantillon (voir figure 3.9) :

- la section efficace de la diffusion élastique dépend du numéro atomique Z ,
- plus l'échantillon est épais plus les électrons diffusent.

Ceci a deux conséquences importantes. L'une sur la nature des échantillons observables : des régions de Z proche (par exemple dans le cas de multicouches d'alliages $\text{Mn}_x\text{Fe}_y\text{Co}_{1-x-y}$) apparaissent avec un faible contraste. L'autre sur la méthode de pré-

paration des lames minces : la zone amincie doit être d'épaisseur relativement constante pour ne pas compliquer l'interprétation des images.

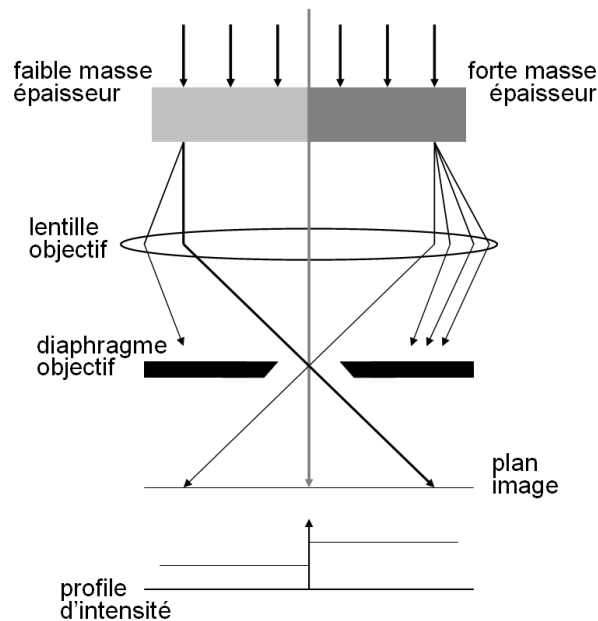


FIGURE 3.9 – Mécanisme de contraste de masse et d'épaisseur.

3.2.2 L'imagerie haute résolution

En imagerie haute résolution (HR) on exploite la phase du signal, non plus son amplitude, pour la formation de l'image. Le contraste provient des interférences des ondes diffractées, au niveau du plan image. Toutefois on ne peut tirer une information de la phase que si l'échantillon est suffisamment mince. En effet, si l'échantillon est épais il y a superposition du contraste de phase et du contraste d'amplitude utilisé pour l'imagerie conventionnelle. Ceci a une conséquence directe sur le choix du mode de préparation de nos échantillons, dont la fabrication suit un procédé d'amincissement qui nécessite de réduire au maximum la quantité de matière, de façon à rendre l'échan-

tillon observable au MET. Par opposition, la synthèse de nano-particules déposées sur une peau de carbone ne nécessite pas de préparation particulière pour l'observation au MET.

L'onde électronique incidente, considérée plane, interagit avec les différentes colonnes atomiques et diffracte. L'onde électronique de sortie $\phi(\mathbf{x}, \mathbf{u})$, en fonction de la coordonnée spatiale \mathbf{x} , est la superposition d'une onde plane et d'une multitude de faisceaux diffractés de fréquence spatiale planaire \mathbf{u} (*cf.* figure 3.2). Le changement de phase de $\phi(\mathbf{x}, \mathbf{u})$ par rapport à l'onde incidente est maximal à la position des colonnes atomiques. L'onde de sortie est transférée à travers le système de lentilles pour former une image dans le plan d'observation.

3.2.3 La spectroscopie de perte d'énergie des électrons

La spectroscopie de perte d'énergie des électrons (ou EELS pour son équivalent anglais “Electron Energy Loss Spectroscopy”) est l'une des techniques analytiques accessibles dans un MET. Proposée initialement par Hiller et Baker en 1944 [88], elle voit aujourd'hui son attractivité accrue grâce au développement de la cartographie des éléments et à la réduction de certaines aberrations dans les MET dédiés à l'EELS.

En EELS, on analyse les électrons diffusés inélastiquement par l'échantillon (*cf.* figure 3.1). Parmi les processus à l'origine de la perte d'énergie des électrons on peut mentionner :

- les excitations de phonons (perte d'énergie $\Delta E \leq 0.1$ eV)
- les excitations de plasmons ($\Delta E \leq 30$ eV)
- les transitions interbandes ($\Delta E \leq 10$ eV)
- les excitations avec les électrons de cœur ($\Delta E \geq 10$ eV)
- l'émission d'électrons secondaires ($\Delta E \leq 50$ eV)
- le Bremsstrahlung (fond continu)

Le spectromètre permettant l'enregistrement du signal est souvent appelé “prisme magnétique” par analogie au prisme optique, puisque dans les deux cas on obtient une dispersion en longueur d'onde. Dans ce prisme, on génère un champ magnétique \mathbf{B} perpendiculaire au faisceau d'électrons, ce qui a pour conséquence de dévier les électrons en fonction de leur énergie $E = (\beta_m - 1)m_0c^2$ (*cf.* figure 3.10), où $\beta_m = \frac{1}{\sqrt{1-(\frac{v}{c})^2}}$, m_0 est la masse de l'électron au repos, v sa vitesse et c la célérité de la lumière dans le vide. La trajectoire des électrons décrit une courbe de rayon R autour de \mathbf{B} . Le rayon

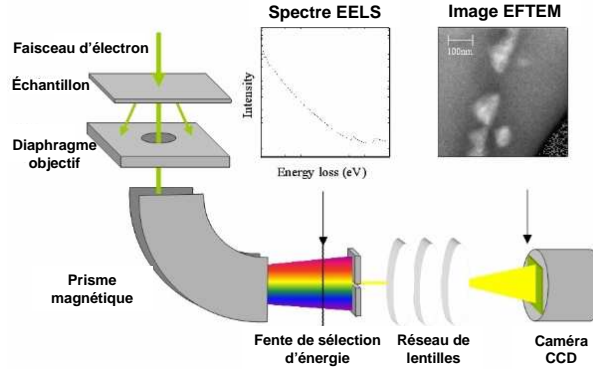


FIGURE 3.10 – Trajectoire des électrons dans un prisme magnétique.

de courbure est donné par l'expression suivante :

$$R = \frac{\beta_m m_0}{eB} v \quad (3.4)$$

L'angle entre la trajectoire des électrons à l'entrée et à la sortie est appelé angle de déflexion ϕ , et est généralement de 90° . L'angle d'ouverture du faisceau d'entrée (γ) doit rester petit car son augmentation est responsable d'aberrations du second ordre qui réduisent la résolution en énergie du spectre. Le point source est en général placé au niveau du point focal de la lentille de projection.

La détection des électrons peut se faire en série ou en parallèle. La détection en série se fait en déplaçant physiquement une fente de sélection d'énergie située en sortie du prisme. Cette fente bloque l'essentiel des électrons, sauf ceux déviés dans la même direction, correspondant à des électrons de même énergie. De cette façon, un détecteur intègre le nombre d'électrons reçu pendant une plage temporelle constante, et l'on obtient une courbe "nombre d'électrons en fonction du temps". Ensuite, à chaque valeur temporelle est associée son équivalent en énergie. Le principal inconvénient de cette méthode de détection est sa sensibilité limitée, du fait qu'il s'agit d'une séquence temporelle.

La détection en parallèle consiste à détecter tous les électrons en même temps sur une barrette de 1024 ou 2048 canaux. Dans ce cas, on améliore la sensibilité de la détection. C'est aujourd'hui le système le plus utilisé.

3.2.4 L'imagerie filtrée en énergie

L'imagerie filtrée en énergie (EFTEM) repose sur le principe de fonctionnement de l'EELS. Comme le montre la figure 3.11, une image non filtrée est formée à partir des électrons élastiques et inélastiques puis transformée en un spectre de pertes d'énergie. Les régions foncée (rouge) et claire (bleue) de l'échantillon, correspondant à des éléments chimiques distincts, entraînent des pertes différentes de l'énergie des électrons (faisceaux plus clairs que la couleur respective de l'échantillon). Le prisme magnétique dévie les électrons en fonction de leur énergie : ceux qui n'en ont pas perdu apparaissent de la même couleur que le faisceau incident et contribuent au pic "zero loss" ; ceux qui ont traversé l'élément plus foncé contribuent à un pic caractéristique de cet élément et il en est de même pour les électrons ayant traversé l'élément plus clair. Une partie du spectre est sélectionnée à l'aide d'une fente de sélection d'énergie puis convertie en une image filtrée en énergie au moyen d'une lentille de projection. Un détecteur adapté acquiert finalement cette image et on obtient des cartographies d'éléments chimiques.

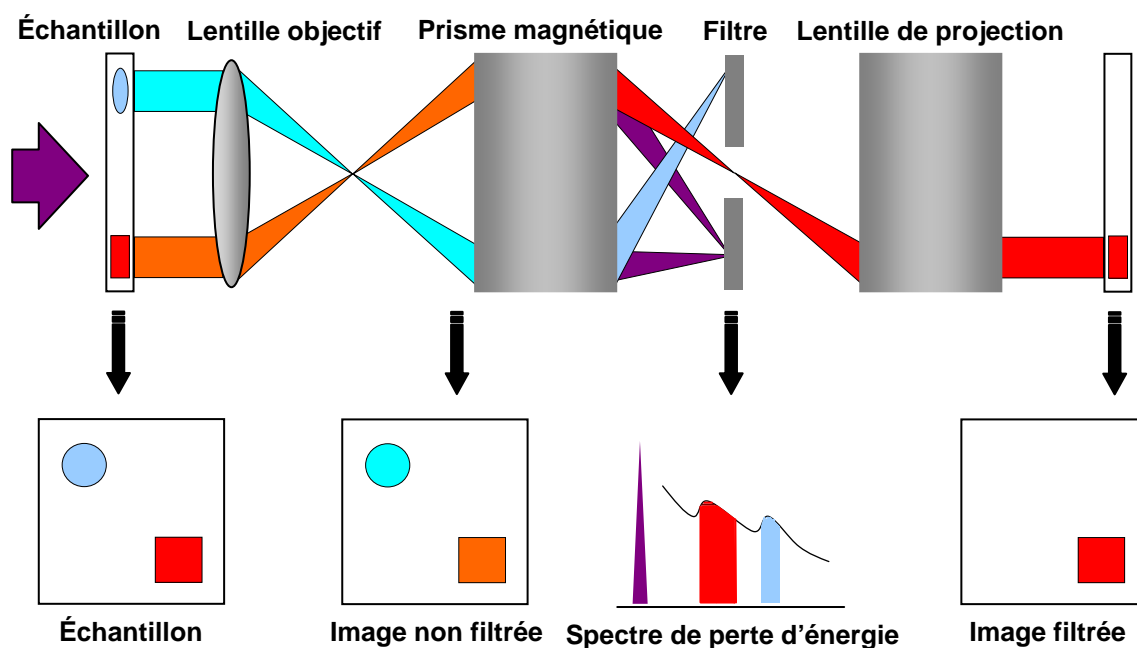


FIGURE 3.11 – Principe de fonctionnement de l'imagerie filtrée en énergie.

Le principe de formation de l'image filtrée peut être comparé à celui des images en champ sombre. L'énergie perdue correspond à l'angle diffraction et le spectre de perte

d'énergie correspond à la figure de diffraction. La fente de sélection d'énergie correspond quant à elle à l'ouverture de l'objectif. En EFTEM, l'image est formée à partir des électrons ayant perdu une quantité précise d'énergie alors qu'en champ sombre l'image est formée à partir des électrons ayant diffracté dans une direction donnée sans perte d'énergie.

3.2.5 La microscopie électronique en transmission à balayage en mode HAADF

En MET à balayage (STEM¹⁸), une sonde électronique très fine (<10 nm) balaie la lame mince. Deux types de STEM sont utilisés. D'une part il y a des STEM dédiés, qui ont la particularité d'avoir leur canon à électrons sous l'échantillon et qui ne possèdent pas d'étage de projection. En effet, l'observation ne se fait pas sur un écran fluorescent, mais directement sur un ordinateur qui reconstruit point par point l'intensité de l'image enregistrée sur une barrette CCD. D'autre part il y a les MET en configuration STEM, qui utilisent les déflectrices situées avant l'échantillon pour balayer la sonde.

Les STEM dédiés présentent un certain nombre d'avantages par rapport au MET : manipulation électronique du signal (contraste, brillance) et meilleur contrôle du faisceau. Toutefois ils présentent des inconvénients : moins bonne résolution spatiale (sauf sur les appareils corrigés) et fort courant électronique nécessaire [87].

Les détecteurs capturent soit le faisceau transmis (BF), soit les faisceaux diffractés (DF), soit les électrons inélastiques diffusés aux grands angles (HAADF¹⁹). En particulier, le détecteur HAADF permet d'acquérir des images HR et de faire de l'analyse chimique. En effet, l'intensité des électrons inélastiques est fortement dépendante du numéro atomique Z des éléments constituant la lame mince. Il est alors possible de faire des cartographies chimiques (un peu comme en EFTEM) avec une meilleure résolution spatiale qu'en analyse dispersive en énergie des rayons-X (EDX). Le STEM en mode HAADF est donc une technique très bien adaptée à la caractérisation de la rugosité des interfaces.

18. acronyme de l'anglais *Scanning Transmission Electron Microscopy*.

19. acronyme de l'anglais *High Angle Annular Dark Field*

3.3 Méthodes de préparation des lames minces

Ces dix dernières années, d'énormes progrès ont été réalisés en microscopie électronique en transmission avec, par exemple, la correction des aberrations sphériques ou le développement de monochromateurs pour canon à électrons. Les résolutions spatiale et en énergie ont été grandement améliorées : les MET avec correction de l'aberration sphérique peuvent résoudre des distances interplanaires de 0.08 nm, et la résolution énergétique des sondes électroniques monochromatées est aujourd'hui de quelques dizaines de meV dans les MET fonctionnant à 200 kV.

Cependant, même les meilleurs équipements ne peuvent corriger les artéfacts résultant d'une préparation inadéquate de lames minces [89–92]. Afin d'exploiter tous les bénéfices de ces nouveaux outils MET, il est nécessaire de poursuivre les efforts dans les techniques de préparation d'échantillons. Depuis le début de la microscopie électronique, un grand nombre de méthodes d'amincissement d'échantillons a été développé pour couvrir la grande variété de matériaux. L'amincissement électrochimique est utilisé pour la plupart des métaux, alors que les oxydes et les semiconducteurs sont amincis par clivage, par polissage mécanique ou à l'aide de faisceaux d'ions [93–96].

Parmi les techniques de préparation de lames minces adaptées aux semiconducteurs, le polissage mécanique (technique du tripode) et le clivage peuvent être écartés dans le cas de nos échantillons. En effet, leur géométrie complexe et leur constitution en GaAs, matériau plus fragile que le Si, rendent impossible l'amincissement précis d'un guide d'ondes. Il reste donc les différentes techniques d'amincissement ionique, que nous avons testées et comparées afin de déterminer la plus appropriée, par rapport à différentes contraintes spécifiques à nos échantillons :

- localisation spatiale, à l'échelle de quelques μm , de la zone à amincir,
- fragilité des échantillons,
- minimisation des modifications chimiques et structurales des échantillons,
- compatibilité des lames minces avec l'observation et l'analyse MET.

Dans ce but, nous avons testé trois techniques reposant sur différents montages à base de faisceaux ioniques :

- le Precise Ion Polishing System (PIPS)
- le Focused Ion Beam (FIB), en collaboration avec le *Laboratoire de Microélectronique et de Physique des Semiconducteurs (LaMIPS)*
- l'Ion Slicer (IS) [97], en collaboration avec *JEOL Europe*

Nous avons fabriqué des lames minces à l'aide de ces trois techniques, puis nous les avons comparées selon deux critères :

1. la qualité des lames minces : épaisseur de la région transparente aux électrons et degré d'amorphisation,
2. le temps d'occupation de l'opérateur : durée de la préparation des échantillons, nombre d'étapes de préparation et taux de succès.

Nous présentons dans cette section les résultats de cette étude.

3.3.1 Mise en œuvre expérimentale

Fabrication de la structure guidée

La fabrication des échantillons est présentée en section 2.2. Nous insistons sur le fait que tous les alliages ternaires sont des super-réseaux équivalents (SRE)²⁰ : ils consistent en la succession alternée de quelques monocouches (MC) des binaires GaAs et AlAs dont les épaisseurs sont choisies afin d'atteindre la composition ternaire ciblée et l'épaisseur visée. La figure 3.12(a) illustre deux alliages digitaux différents présents dans nos guides d'ondes : $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ (Fig. 3.12(b)) consiste en deux fois 1.3 MC de GaAs intégrées entre 43.2 MC d'AlAs ; $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ consiste en une séquence alternée de 3 MC de GaAs et 7 MC d'AlAs. Nous verrons en section 3.3.2 que ce type d'alliage peut être un bon indicateur d'amorphisation induite par la préparation des lames minces.

La figure 3.13 illustre les différentes grandes étapes de la fabrication d'un échantillon et la difficulté d'en extraire une lame mince pour la microscopie électronique. Tout d'abord le confinement latéral des modes guidés est obtenu en gravant, dans un morceau massif (I), des guides de 3 μm de large par 3 μm de haut séparés de 150 μm (II). Ceux-ci sont orientés selon la direction $[110]$ du GaAs. Ensuite on transforme les couches de $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ en AlOx grâce au procédé d'oxydation latérale humide (III) présenté en section 2.2.2. On constate donc que les zones que l'on souhaite analyser en MET sont des rectangles d'environ 1 μm^2 espacés de 150 μm . La dernière étape est l'amincissement localisé sur un des guides d'ondes (IV).

20. Ils sont aussi parfois appelés alliages digitaux.

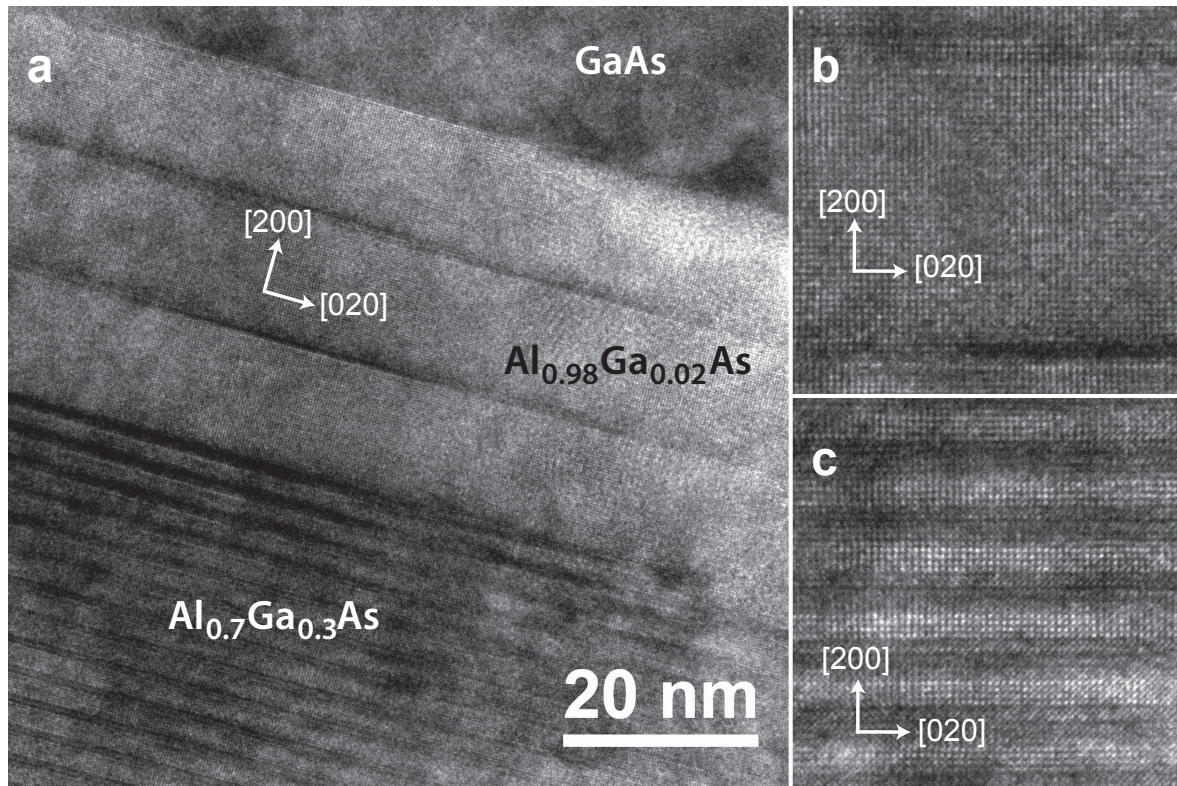


FIGURE 3.12 – Images MET d’alliages digitaux : a) interface $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ / $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ où l’on distingue deux types d’alliages digitaux : en haut de l’image (a) l’alternance de 43.2 monocouches (MC) d’AlAs et de 1.3 MC de GaAs forme une couche de $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ de 37.5 nm d’épaisseur (b) ; en bas de l’image (a) une couche de $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ de 1 μm d’épaisseur ; (c) a été épitaxiée en alternant 3 MC de GaAs et 7 MC d’AlAs.

Préparation de lames minces pour l’observation MET

Dans la suite, nous décrivons les différents instruments utilisés pour amincir la région spécifique correspondant au cœur multicouche d’un des guides d’un échantillon. Deux d’entre elles étaient basées sur l’utilisation de faisceaux d’ions Ar^+ : le Gatan Model 691 PIPS et le JEOL EM-09100IS, la troisième sur l’utilisation d’ion Ga^+ : le système FIB simple faisceau FEI 200 XP.

Procédure PIPS

- Dans l’échantillon initial nous coupons deux morceaux de 2.8 mm \times 1.0 mm \times

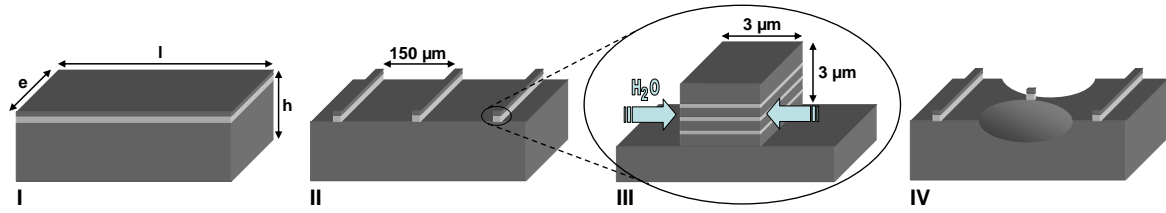


FIGURE 3.13 – Principales étapes de la préparation de lames minces : A partir de l'hétérostructure massive (I), une étape de photolithographie standard définit les motifs des guides de $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ espacés de $150 \mu\text{m}$ qui sont ensuite gravés (II). Cette étape est rapidement suivie par le procédé d'oxydation sélective des couches de $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ (III). Finalement les lames minces sont obtenues par un amincissement ionique localisé au plus proche d'un guide (IV).

0.5 mm ($l \times h \times e$, cf. figure 3.13I) à l'aide d'une scie à fil diamanté.

- Nous collons les deux morceaux avec une colle époxy de telle sorte que les guides se trouvent en regard, puis nous serrons le tout de façon à réduire au minimum l'épaisseur de la couche de colle.
- L'échantillon est ensuite aminci jusqu'à réduire son épaisseur à environ $30 \mu\text{m}$, puis poli des deux côtés au moyen d'une polisseuse ESCIL ESC 200 GTL et de disques abrasifs. Nous utilisons successivement des disques avec des particules de diamants de diamètre 9-6-3-1- $0.5 \mu\text{m}$.
- A ce stade, l'échantillon est extrêmement fragile. Il est donc collé avec précaution sur une rondelle de cuivre spécial MET. La rondelle est ensuite fixée sur un porte-échantillon, lui-même placé dans le PIPS.
- L'échantillon est aminci pendant 2 à 3 heures par deux faisceaux d'ions Ar^+ (un de chaque côté de l'échantillon) à 6 kV avec un angle d'incidence de 8° , jusqu'à la formation d'un trou au milieu de l'échantillon. La durée de cette étape dépend directement de l'épaisseur initiale de l'échantillon (d'où sa réduction à $30 \mu\text{m}$ dans l'étape précédente) et de la focalisation des faisceaux.
- Afin d'éliminer la couche amorphe ayant pu se former à cause de l'irradiation des faisceaux, nous nettoyons la lame mince en la polissant avec les faisceaux d' Ar^+ à 6 kV avec un angle d'incidence de 6° pendant 15 minutes, puis avec les faisceaux à 4 kV avec une incidence de 4° pendant 2 minutes.
- L'inconvénient majeur de cette technique est l'absence, en cours d'amincissement, de contrôle du positionnement de l'échantillon par rapport au point de focalisation

des faisceaux d'Ar⁺. Il est donc essentiel de contrôler la position de la partie mince à l'aide d'un MET. Si la partie mince correspond au cœur d'un guide la procédure est stoppée. Dans le cas contraire, nous reprenons la procédure à partir de l'abrasion sous faisceaux à 8 kV, afin d'agrandir le trou formé et de rapprocher son contour (c'est-à-dire la partie mince) d'un guide.

Cette routine est évidemment limitée puisque le trou ne peut pas être agrandi indéfiniment. Un autre inconvénient de cette technique est la multiplicité des manipulations de l'échantillon, qui contribue à un risque élevé de son endommagement.

Procédure FIB Le FIB est une technique basée sur l'utilisation d'un faisceau d'ions Ga⁺ focalisé pour façonner la matière (gravure, lithographie, amincissement). Le modèle FEI 200XP est un système simple faisceau adapté au retrait *in situ* des lames minces [98–100]. L'un des injecteurs de gaz a été transformé pour supporter une pointe, avec laquelle on prélève les lames minces directement dans le FIB. Dans le FEI 200XP les échantillons peuvent avoir une taille initiale allant de quelques mm² à 5 cm × 5 cm. Pour nos échantillons aucune préparation préalable n'est donc requise, ce qui allège grandement la procédure.

- Tout d'abord, afin de s'assurer qu'il n'y ait pas de dégât d'irradiation lors de la localisation de la zone d'intérêt, une fine couche de Au-Pd est déposée à la surface de l'échantillon.
- De la même manière, une couche de platine est déposée dans le FIB en augmentant progressivement le courant d'ions de 4 pA à 1nA (Fig. 3.14a).
- En utilisant un fort courant ionique (6 et 12 nA), deux gros trous sont creusés, entre lesquels reste une lame de 3 à 4 μm d'épaisseur (Fig. 3.14b).

Suite à cette dernière étape il est possible d'imager la lame en section transverse, en utilisant un faisceau d'ions à très faible courant (5 pA) afin de limiter les phénomènes d'implantation (Fig. 3.14c). Le contraste des images FIB permet de distinguer clairement les différentes couches du guide d'ondes. De la même façon, le taux de Ga⁺ dans la couche de platine varie en fonction du courant du faisceau ionique utilisé, entraînant une différence de contraste.

- La lame est ensuite découpée en faisant une incision à droite, à gauche et sous celle-ci (Fig. 3.14c).
- Elle est récupérée à l'aide d'une aiguille en tungstène montée sur l'un des injecteurs de gaz du FIB.

- Elle est collée sur une grille de cuivre spéciale MET au moyen d'un dépôt de platine (Fig. 3.14d).
- Finalement la lame est réduite à une épaisseur comprise entre 100 à 200 nm avec le faisceau de Ga^+ .

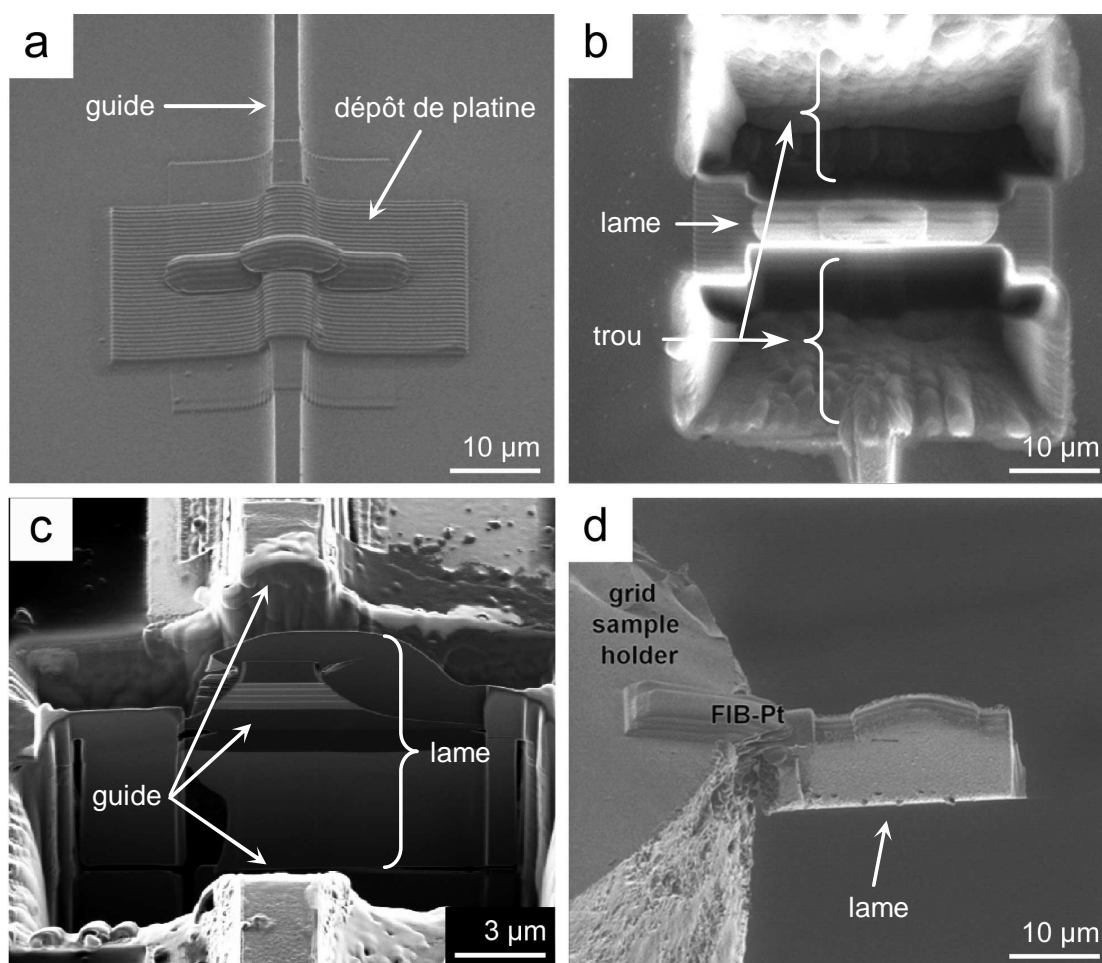


FIGURE 3.14 – Étapes de préparation de lames minces avec un FIB : a) surface de l'échantillon protégée par des dépôts de Pt ; b) la lame fait environ 4 μm , prête pour être détachée du substrat ; c) image FIB en section transverse du guide d'ondes ; d) lame épaisse fixée à la pointe d'une fibre optique. La lame est ensuite amincie à au moyen d'un faisceau de Ga^+ pour être transparente sous le faisceau d'électrons d'un MET.

Procédure Ion Slicer

- Dans l'échantillon initial nous clivons un morceau de $2.8 \text{ mm} \times 0.4 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ ($l \times h \times e$).
- Nous amincissons ce morceau avec des disques abrasifs avec des particules de diamants de 6 puis $3 \mu\text{m}$. L'épaisseur finale est de l'ordre de $100 \mu\text{m}$, ce qui n'impose pas de précaution particulière lors des manipulations de l'échantillon.
- Nous le mettons ensuite en place sur un support adapté à l'IS et le plaçons dans ce dernier. Une caméra CCD *in situ* autorise un positionnement micrométrique des guides d'ondes par rapport au faisceau d' Ar^+ . Comme l'illustre la figure 3.15, une ceinture résistante au faisceau, d'une épaisseur de $20 \mu\text{m}$, est approchée de l'échantillon, protégeant ainsi ce dernier sur sa tranche.

L'amincissement ionique se fait au moyen d'un large faisceau d' Ar^+ (1 mm de diamètre) passant alternativement d'un côté de l'échantillon à l'autre, et permettant d'amincir une région d'environ $200 \mu\text{m}$ de large, nous assurant donc d'atteindre au moins un guide.

- une première étape, d'environ une heure avec un faisceau à 8 kV incliné de 1.3° , est nécessaire pour percer un trou et permettre au bord d'atteindre un guide. Cette étape est contrôlable grâce à la caméra CCD, dont le grandissement est suffisant pour observer la position de la partie amincie en mode optique en transmission. De cette façon il est possible de distinguer si un guide est aminci ou non.
- Cette opération est suivie par une étape de 2 minutes avec un faisceau de 4 kV incliné à 1.3° , puis par une étape d'une minute avec un faisceau de 2 kV incliné de 1° pour supprimer la couche amorphe qui s'est formée à la surface.

La lame mince a finalement une forme en "lame de couteau" comme suggéré par la figure 3.15(b) et (c). Une observation au microscope électronique à balayage permet, sans changer l'échantillon de support, de contrôler l'état réel de la lame. Dans 80% des cas cela confirme un amincissement suffisant au niveau d'un guide d'ondes. Dans le cas contraire une reprise d'amincissement est possible.

Observations MET

Les observations ont été réalisées à l'*Institut de Minéralogie et de Physique des Milieux Condensés* avec un MET JEM 2100F, équipé d'un canon à émission de champ opérant à 200 kV. Les images haute résolution ont été acquises avec une caméra CCD

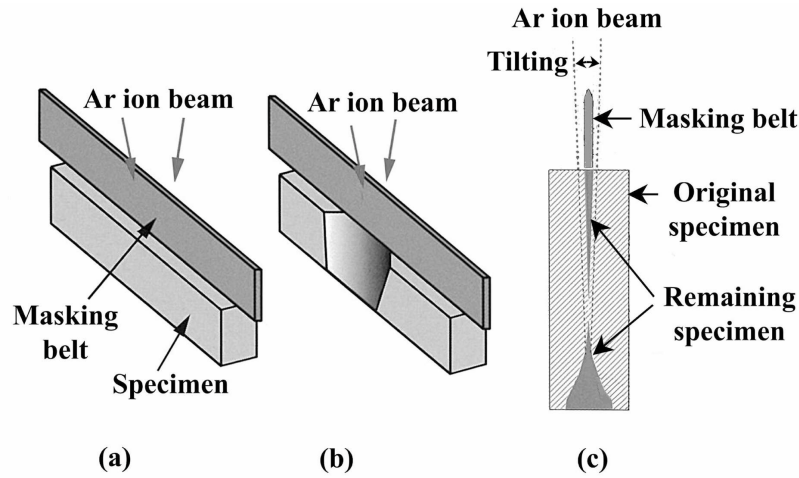


FIGURE 3.15 – Étapes de préparation de lames minces avec l'IS (d'après [97]).

Gatan Ultrascan 4000SP. Pour les cartographies d'épaisseur, nous avons utilisé un filtre Gatan Imaging Filter (GIF) avec une ouverture de 3 mm et la technique d'imagerie du *jump ratio* à deux fenêtres [101]. Le temps d'exposition choisi était d'une seconde pour des fenêtres spectrales de 10 eV de large avec un angle de collection de faisceau de 11.0 mrad, défini par l'ouverture de l'objectif.

3.3.2 Résultats

Dans le but de déterminer quelle technique de préparation de lames minces est la mieux adaptée à nos échantillons, et de définir les meilleures conditions d'opération, nous avons comparé les différentes techniques sur la base des critères définis précédemment.

Localisation de la zone à amincir

La géométrie complexe des échantillons, c'est-à-dire un guide de $3 \times 3 \mu\text{m}^2$ tous les 150 μm , additionnée à leur fragilité, font de l'amincissement précisément localisé sur un cœur multicouche oxydé, un véritable challenge. Les vues d'ensemble des lames minces préparées avec les différentes techniques sont visibles sur la figure 3.16. Bien que le PIPS soit connu pour préparer des lames minces d'excellente qualité à partir de structures massives, il s'est révélé peu efficace quand naît le besoin de localiser l'amincissement. En conséquence, et malgré de nombreux essais, nous n'avons pas réussi à

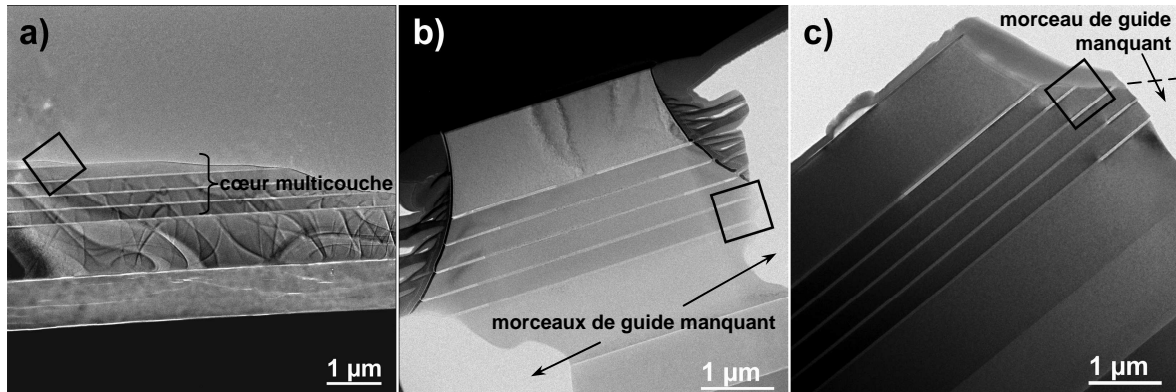


FIGURE 3.16 – Vues d’ensemble des lames minces en fonction de la méthode de préparation : préparation par PIPS (a), FIB (b) et IS (c). Sur chaque image, le carré noir correspond à la zone référence pour les cartes d’épaisseur (Fig. 3.17).

amincir correctement un échantillon dans la zone d’intérêt. Cela est principalement dû au fait qu’il n’existe aucune manière de positionner précisément l’échantillon de façon à ce que les faisceaux de Ga^+ amincissent un guide d’ondes. La lame mince présentée sur la figure 3.16a a donc été préparée à partir d’un échantillon massif (non gravé, non oxydé tel que montré sur la figure 3.13I)) pour cette étude comparative.

La figure 3.16b montre une lame mince préparée par FIB. Cette technique permet une excellente localisation de l’amincissement, ce qui est son grand avantage, et facilite grandement la préparation de lames minces. Cependant, la fragilité du dispositif, qui augmente après l’étape d’oxydation sélective en raison d’une possible délamination des couches d’AlOx [46], associée à l’énergie élevée du faisceau d’ion Ga^+ (30 kV) complique l’amincissement. Ainsi, on voit sur la figure 3.16b que la lame a été cassée en deux endroits, en préservant heureusement le cœur multicouche.

Sur la figure 3.16c on voit une lame mince préparée avec l’IS. Bien que cette technique soit assez proche de celle du PIPS, l’IS bénéficie d’une plateforme mobile permettant de positionner l’échantillon avec une relativement bonne précision. La caméra CCD nous permet d’arrêter la procédure quand le bord du trou, formé par le faisceau de Ga^+ , atteint la région d’intérêt. Bien que les dimensions caractéristiques de nos guides soient proches de la limite de résolution de la caméra, il est possible de les distinguer pendant l’amincissement. En revanche, il n’est pas facile de déterminer quand le guide atteint est transparent aux électrons. Ainsi, sur la figure 3.16c on constate qu’une petite partie de l’échantillon a disparu sous l’irradiation ionique.

Épaisseur des lames

Afin de pouvoir faire de l'imagerie à haute résolution ou HAADF, ou de la spectroscopie EELS, l'épaisseur des lames minces doit être la plus faible possible. Nous avons donc comparé la capacité de chacune des techniques à produire des lames très minces. Pour cela nous avons acquis des cartes d'épaisseur au niveau des régions indiquées par les carrés noirs sur la figure 3.16. L'épaisseur (en nm) est obtenue grâce à l'expression de Malis *et al.* [102] : $t = \lambda \ln(I/I_0)$, où λ est le libre parcours moyen des électrons (à l'intérieur des couches de GaAs, dans le cas de nos lames minces), I_0 est l'intensité de l'image élastique et I celle de l'image non filtrée. Le libre parcours moyen (en nm) est calculé en utilisant l'expression de Malis *et al.* : $\lambda = 106F(E_0/E_m)/(\ln(2\beta E_0/E_m))$, avec $F = (1 + E_0/1.022)/(1 + E_0/511)^2$, et où l'énergie des électrons incidents E_0 est en keV, le demi-angle de collection β est en mrad et $E_m = 7.6Z^{0.36}$ (Z est le numéro atomique du matériau de référence). En utilisant $Z_{GaAs} = 0.5 \times (Z_{Ga} + Z_{As})$ nous avons trouvé $\lambda=162.5$ nm.

Les figures 3.17a, b et c correspondent aux cartes d'épaisseur des lames minces préparées par PIPS, FIB et IS respectivement. La figure 3.17d est un tracé de l'épaisseur des lames minces en fonction de la distance à la partie la plus mince (c'est-à-dire proche d'un trou). L'épaisseur est moyennée sur la largeur des rectangles en pointillés. Les flèches blanches pointent vers les zones les plus épaisses.

Le FIB utilisé permet d'amincir jusqu'à 160-180 nm, ce qui est trop épais pour faire de l'imagerie haute résolution. Le début de la courbe, suggérant une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres, correspond probablement à un bord cassé. L'amincissement à l'IS permet d'obtenir des lames de seulement 100 nm avec une faible variation de l'épaisseur. La pente est d'environ 2° sur 500 nm, ce qui correspond à un angle d'incidence de 1° du faisceau de Ar^+ , en accord parfait avec les conditions expérimentales. Ceci est un grand avantage pour la visualisation des lames minces au MET car les conditions d'observation varient très peu avec la zone observée, ce qui limite les variations de mise au point. Finalement le PIPS est un bon compromis puisqu'il permet d'amincir jusqu'à 40 nm d'épaisseur, mais une variation plus importante de l'épaisseur (la pente est d'environ 8° ce qui correspond à un angle d'incidence de 4° des faisceaux de Ar^+ , aussi en bon accord avec les conditions expérimentales). La lame mince est moins épaisse que celle préparée avec l'IS sur environ 450 nm, mais est plus affectée par les problèmes de variation de mise au point mentionnés plus haut. L'absence de

données sur la courbe PIPS est due à la traversée d'un matériau différent de GaAs (c'est-à-dire avec un libre parcours moyen différent). Par ailleurs, les lames préparées par le PIPS souffrent de fortes contraintes mécaniques comme le suggèrent les lignes de contraste de flexion visibles sur la figure 3.16(a). Cet effet n'est pas observé sur les lames minces préparées par PIPS ou IS.

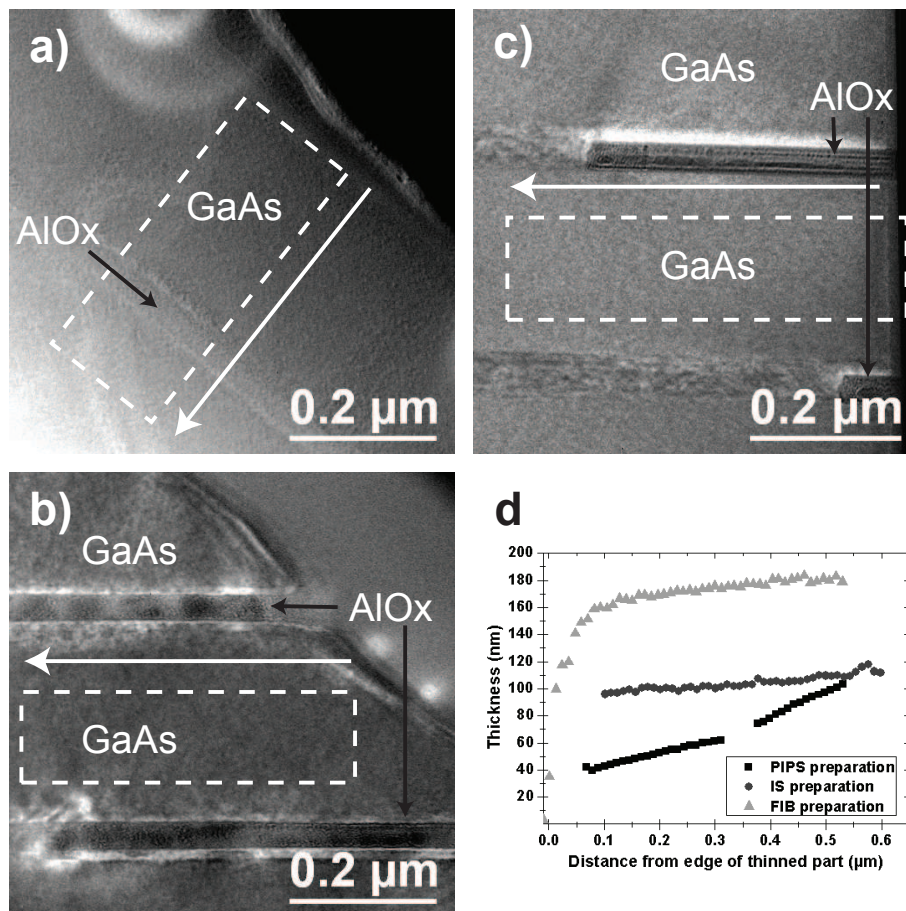


FIGURE 3.17 – Comparaison des épaisseurs des lames minces en fonction de la méthode de préparation : a) PIPS, b) FIB et c) IS. Les zones entourées par des rectangles blancs en pointillés correspondent aux régions dont on a évalué l'épaisseur. Les flèches blanches indiquent la pente des zones les plus minces vers les zones les plus épaisses. Les résultats sont tracés sur le graphique d).

Amorphisation induite et contraste en imagerie haute résolution

Des lames très minces sont indispensables pour faire de l'imagerie haute résolution, mais il est aussi nécessaire de ne pas modifier la structure des matériaux au cours de l'amincissement. Cependant, toutes les techniques basées sur l'utilisation de faisceaux ioniques induisent des dégâts d'amorphisation à la surface des matériaux [90, 103, 104]. Pour cette raison, nous avons comparé qualitativement en termes de contraste, les lames minces préparées par PIPS, FIB et IS.

En général, l'augmentation de l'épaisseur d'une lame mince diminue le contraste du réseau cristallin sans introduire d'autres fréquences spatiales. Les franges du réseau sont, dans ce cas, toujours visibles. En revanche, la formation d'une couche d'amorphe à la surface de la lame mince brouille les franges du réseau cristallin. La présence ou l'absence des fines couches de GaAs initialement présentes dans les alliages digitaux formant les couches de $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ s'est révélée un bon indice d'amorphisation, confirmé par l'étude du contraste des images présentée ci-dessous.

La figure 3.18a exhibe des détails de haute résolution et la fine couche de GaAs (plus sombre que l'AlAs) est bien visible, suggérant peu de dégâts d'amorphisation. Sur la figure 3.18b, par contre, il est clair qu'une couche amorphe s'est formée sur toute la lame mince puisque l'on distingue très difficilement les détails cristallins de l'image. La fine couche de GaAs n'est plus du tout visible. Finalement, dans le cas de la lame mince préparée par IS (Fig. 3.18c), il n'y a pas d'évidence de dégâts d'amorphisation induite. Ces observations sont corroborées par les grandissements et profils associés : la fréquence spatiale associée au réseau cristallin est bien marquée sur les figures 3.18d et f (amincissement sous faisceaux d' Ar^+), alors qu'elle est très bruitée dans le cas de l'amincissement sous faisceau de Ga^+ (Fig. 3.18e).

Le contraste des images HR est lié à l'épaisseur de la lame mince ainsi qu'au degré d'amorphisation de la surface. Dans le cas de l'amincissement au FIB le profil d'intensité a un contraste de $C_{FIB}=0.08$ alors que dans le cas du PIPS ou de l'IS les contrastes sont $C_{PIPS}=0.27$ et $C_{IS}=0.24$ respectivement. Cela est dû à deux raisons. D'une part il a déjà été démontré que les lames minces préparées par FIB souffrent davantage d'amorphisation induite par le faisceau de Ga^+ que les lames préparées par amincissement sous faisceaux d' Ar^+ : Yabuuchi *et al.* ont démontré qu'avec un faisceau de Ga^+ à 30 kV, une couche de 16 nm d'amorphe se formait à la surface de lames minces de GaAs préparées par FIB [104]. D'autre part, nous avons montré dans la section précédente

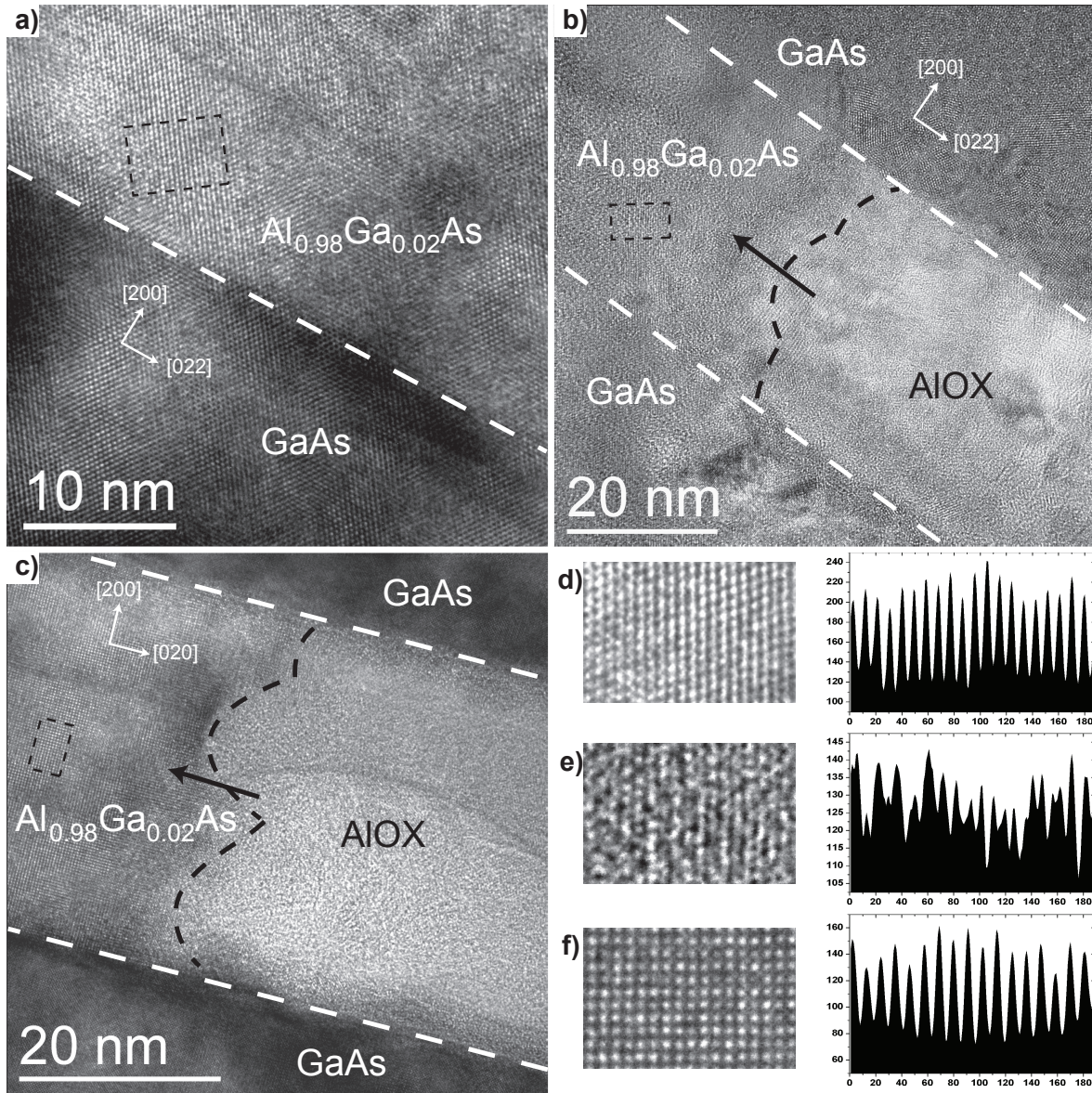


FIGURE 3.18 – Images HRTEM illustrant l'amorphisation induite lors de la préparation des lames minces : a) Préparation PIPS : en haut de l'image on distingue parfaitement 1.3 MC de GaAs contribuant au SRE $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$. b) Préparation FIB : le SRE n'est plus visible en raison d'une importante amorphisation de la surface de la lame mince sous le faisceau de Ga^+ . c) Préparation IS : les deux 1.3 MC de GaAs sont toujours visibles et l'ensemble de l'image exhibe des détails cristallins. Les images d), e) et f) montrent les grossissements et les profils d'intensité associés des régions entourées par un rectangle en pointillés noirs sur les images a), b) et c) respectivement. Les grossissements et les profils suggèrent que l'aminçissement au FIB induit plus de dégâts d'amorphisation que l'aminçissement sous faisceaux d' Ar^+ .

que les lames minces préparées par FIB étaient plus épaisses que celles préparées par PIPS ou IS. Notons que les contrastes C_{PIPS} et C_{IS} peuvent difficilement être comparés, principalement car les images ont été obtenues avec des lames orientées selon des axes de zone différents, et en utilisant des réflexions de Bragg différentes pour former le contraste.

3.3.3 Discussion

Nous avons résumé tous les résultats et les observations précédents dans le tableau 3.1, qui permet une comparaison rapide des techniques d'amincissement ionique testées. Il apparaît que le PIPS et le FIB possèdent des avantages complémentaires : facilité et rapidité de préparation d'une lame mince, associées à une localisation précise pour le FIB ; qualité des lames minces adaptée à toutes les techniques d'observation et d'analyse MET pour le PIPS. Cela explique d'ailleurs la tendance récente à combiner ces deux techniques, pour amincir de façon localisée des lames compatibles avec les études MET [105–107]. De son côté, l'IS satisfait à tous les critères que nous avons fixés, avec de bonnes performances. Ces trois techniques peuvent être utilisées pour la préparation de lames minces pour la microscopie électronique en transmission et le choix de l'une ou l'autre sera dicté par les besoins de l'utilisateur.

Critère	Technique		
	PIPS	FIB	IS
Préparation avant amincissement	– –	++	+
Localisation de l'amincissement	– –	++	+
Temps d'opération	– –	+	+
Epaisseur finale	++	–	+
Dégâts d'amorphisation	+	– –	+

TABLE 3.1 – Avantages et inconvénients des différentes techniques d'amincissement allant de très mauvais (– –) à très bons (++).

Notons que le FEI 200 XP n'était pas le modèle de FIB le mieux adapté à nos besoins. Il s'agit en effet d'un système simple-faisceau qui ne permet pas, à l'aide

d'une dernière étape à faible tension (2 kV), de supprimer la couche d'amorphe formée à la surface des lames minces. Cette procédure est accessible sur les systèmes double-faisceau dédiés à la préparation de lames minces MET (colonnes ionique et électronique). Cependant, même avec ce type d'instruments, il n'est pas possible de supprimer complètement la couche amorphe à la surface de la lame qui, dans le cas de l' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ est réduite à 3 nm dans le meilleur des cas [104]. Par ailleurs ce type d'instrument est très onéreux ($\approx 1\text{M€}$) alors qu'un système simple faisceau est deux fois moins cher. L'utilisation d'un système double-faisceau doit donc être fortement imposé par la nécessité absolue de localiser précisément la région d'intérêt avec un minimum d'effort.

L'IS, bien moins cher qu'un FIB ($\approx 150\text{k€}$), s'est révélé la solution la plus efficace, avec une préparation limitée du morceau que l'on veut amincir, une localisation relativement simple de la zone d'amincissement, un grand taux de succès de préparation de lames minces ($\approx 80\%$) et une excellente qualité des lames permettant la conduite de tout type d'étude MET. De plus, avec cette technique nous n'étions pas gênés par l'implantation de Ga^+ comme c'est le cas dans une préparation FIB. Ceci est un point très important si l'on souhaite conduire une analyse chimique des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$.

Pour toutes ces raisons, l'IS devrait être largement utilisé dans tous les cas d'étude MET nécessitant une localisation spécifique de la zone mince, comme par exemple dans le cas récent de Sorbello *et al.* et de leur bi- et tri-cristaux [107]. Soulignons qu'une lame mince adaptée à l'observation HRTEM est aussi adaptée à la plupart des techniques MET. Au vu de la qualité des images HRTEM réalisées sur la lame préparée avec l'IS nous avons pu conduire une étude très complète de caractérisation structurale des guides d'ondes. Ces résultats, constituant le cœur de cette thèse, sont présentés dans la section suivante.

3.4 Résultats des observations MET

3.4.1 Caractérisation des interfaces GaAs/AlOx

Mesure de la rugosité des interfaces

Le MET est un outil très puissant pour la quantification de la rugosité des interfaces GaAs/AlOx induite par l'étape d'oxydation latérale humide. La manière la plus évidente de caractériser cette rugosité est de faire de la HRTEM. Cette technique permet

en effet l'observation, à des échelles très petites, de détails de l'ordre de la monocouche atomique. Toutefois, la visualisation des rangées atomiques, en haute résolution, est optimale au défocus de Scherzer²¹ [84]. L'inconvénient d'un tel mode de fonctionnement est la délocalisation des électrons aux interfaces, qui se traduit par une mauvaise définition de celles-ci. En conséquence nous avons préféré faire des observations en HAADF, technique sensible au numéro atomique des différentes zones d'une lame mince et qui bénéficie d'une meilleure précision sur la position des interfaces.

Nous avons acquis une série d'images HAADF de la dernière couche épitaxiée d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ (que nous désignerons par AlAs dans la suite). Elle est entourée par une couche d' $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ (que nous désignerons par AlGaAs dans la suite) d'une part et une couche de GaAs d'autre part. Une série a été faite à partir d'un échantillon non oxydé, et une autre à partir d'un échantillon oxydé dans les conditions spécifiées en section 2.2.2. De cette façon, nous avons pu caractériser les interfaces GaAs/AlAs, AlGaAs/AlAs, GaAs/AlOx et AlGaAs/AlOx présentes dans le cœur de nos guides d'ondes. Pour chacune de ces interfaces, le Ga n'est présent que d'un côté. Or, le contraste chimique des images HAADF résulte de la concentration en Ga en différentes zones, et nous permet donc de définir les interfaces très précisément. De façon à avoir une information avec la meilleure statistique, nous avons acquis des images successives le long des couches, sur plusieurs centaines de nm (200 à 650 nm selon les échantillons). Ceci a été possible grâce à l'excellente préparation des lames MET bénéficiant d'une épaisseur quasi-constante, et transparente aux électrons sur plusieurs centaines de nm. Nous montrons un exemple de ce type d'image pour l'échantillon non oxydé sur la

21. En HRTEM, le microscope est caractérisé par une fonction de transfert, $T(\mathbf{u})$, qui transforme l'onde électronique d'entrée ϕ_0 en une onde de sortie du microscope $\phi(\mathbf{x}, \mathbf{u})$. Lorsque $T(\mathbf{u})$ est négative, le contraste de phase est positif, ce qui signifie que les atomes apparaissent sombres et le fond apparaît clair. L'inverse se produit quand $T(\mathbf{u})$ est positive. Lorsque $T(\mathbf{u})=0$ aucun détail n'apparaît sur l'image. La fonction de transfert idéale est donc une fonction constante et non-nulle pour toutes les fréquences. Malheureusement une telle fonction n'existe pas. À défocus nul, $T(\mathbf{u})$ possède plusieurs 0, ce qui a pour effet d'inverser le contraste en fonction de la fréquence. Le premier 0 apparaît à la fréquence \mathbf{u}_1 et lorsque l'on défocalise le microscope on repousse cette fréquence. En faisant cela, on élargit la bande spectrale qui participe à la construction de l'image HR. Toutefois, si l'on défocalise encore plus la lentille objectif, on crée des bandes de fréquences qui s'approche de 0 au sein de la bande $[\mathbf{0}-\mathbf{u}_1]$. Les conditions de défocus de Scherzer sont celles qui permettent d'optimiser la qualité de l'image HR en obtenant la plus grande plage de fréquences avec un déphasage quasi constant. Malheureusement, le fait de défocaliser cette lentille délocalise spatialement les électrons (et par conséquent l'image), et les interfaces entre deux matériaux sont alors mal définies.

figure 3.19a, et pour l'échantillon oxydé sur la figure 3.19b. La différence la plus remarquable entre les deux images est l'importante modification de l'aspect de l'interface AlAs/AlGaAs lorsqu'elle devient AlOx/AlGaAs. En revanche, l'aspect de l'interface GaAs/AlAs ne semble pas évoluer autant après l'oxydation. Nous commenterons en détails ces observations plus loin.

Afin de mesurer précisément l'amplitude de la rugosité de chaque type d'interfaces, nous avons mis au point la méthodologie suivante :

1. recombinaison des images,
2. amélioration du contraste,
3. binarisation de l'image,
4. recherche des coordonnées de l'interface,
5. ajustement linéaire de la position moyenne de l'interface,
6. élimination du gradient,
7. analyse numérique du profil ainsi obtenu.

La recombinaison des images (1) fait référence à la fabrication d'une seule image à partir de la série complète d'images HAADF. Pour cela, au moment de l'acquisition des images, nous avons pris soin de faire se recouvrir deux images successives sur une zone commune. Lors de la recombinaison, nous avons fait attention à la présence de détails communs aux deux images pour les faire se recouvrir parfaitement.

Nous avons ensuite réglé de façon optimale le contraste de l'image "panoramique", afin que la couche centrale apparaisse la plus sombre possible et les couches voisines les plus claires possible (2). Cette étape est cruciale car il faut éviter de perdre les petits détails des interfaces qui traduisent justement leur rugosité.

La binarisation de l'image (3) consiste à a) fixer un niveau d'intensité de seuil²² et b) convertir tous les pixels dont le niveau d'intensité est en dessous ou au-dessus du seuil en 0 ou 1 respectivement. Puisque la couche centrale est très sombre, son intensité est proche de 0. De même, les couches voisines très claires ont un niveau proche de 255. Le niveau de seuil peut donc être fixé à la moyenne des niveaux, ou bien à une valeur mieux adaptée selon la situation. Lors de la binarisation de l'image nous avons particulièrement fait attention à la mauvaise interprétation du niveau d'intensité réel

22. Nous faisons ici référence au niveau de gris d'une image numérique. Celui-ci est codé sur 1 octet, soit 256 bits allant de 0 à 255.

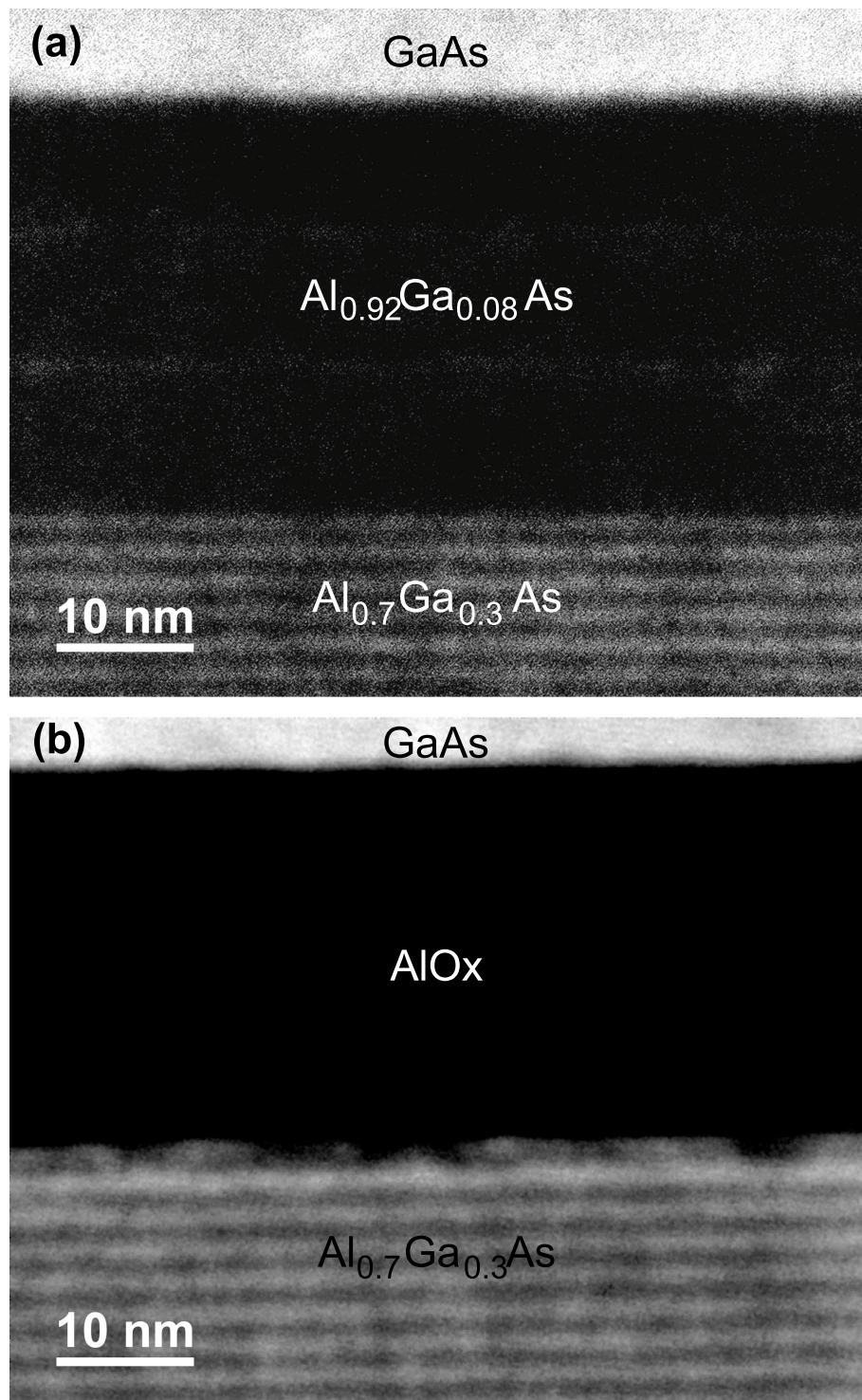
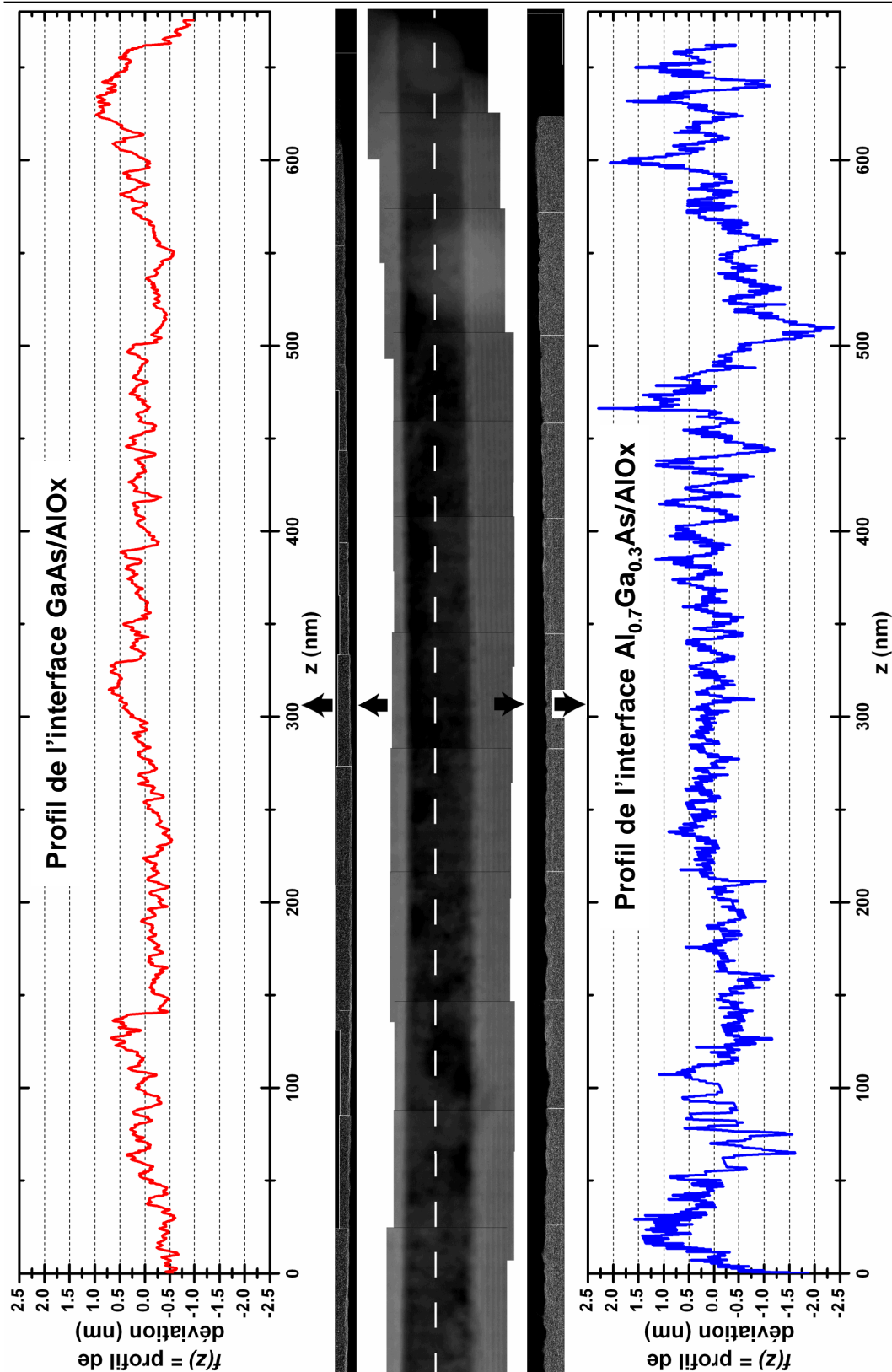


FIGURE 3.19 – Exemples d'images HAADF pour la caractérisation de la rugosité des interfaces : a) cas d'un échantillon non oxydé, b) cas d'un échantillon oxydé.

FIGURE 3.20 – Détermination du profil des interfaces GaAs/AlOx et $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/\text{AlOx}$.

des pixels, en particulier autour de l'interface. En effet, dans une colonne de pixels traversant l'interface, une séquence de pixels dont le niveau d'intensité est proche du niveau seuil peut être alternativement convertie en 0 ou 1. Dans ce cas, l'interface n'est pas correctement définie. Pour éviter ce phénomène, nous avons fixé un nombre minimum de pixels successifs de même valeur (0 ou 1) afin de valider la position de l'interface.

La recherche des coordonnées de l'interface (4) se fait ensuite à l'aide d'un algorithme qui scanne une par une les colonnes de l'image numérique. Il localise la position du pixel dont la valeur est différente de celle de son prédécesseur. On ajuste ensuite le profil de l'interface avec une fonction linéaire (5) puis on soustrait le gradient de cette fonction au profil afin d'obtenir une interface parfaitement horizontale (6). Finalement, il nous est possible de traiter numériquement le profil d'interface (7) pour en déduire les deux paramètres nécessaires par la suite : la perturbation quadratique moyenne σ^2 et la longueur de corrélation L_c du profil.

Nous avons utilisé cette méthodologie pour le traitement des images HAADF des échantillons avant et après oxydation. La figure 3.20 donne un exemple d'une recombinaison d'images avant (image centrale) et après (images extérieures) traitement numérique. On constate qu'après traitement, les interfaces sont parfaitement définies. Après avoir supprimé tout le gradient à chaque interface, nous avons pu tracer leur profil de déviation $f(z)$. En haut de l'image, en rouge, nous montrons le profil de déviation de l'interface GaAs/AlOx. Celui de l'interface AlGaAs/AlOX est représenté en bleu en bas de l'image.

Nous avons ensuite déterminé la fonction d'autocorrélation $R(u)$ de $f(z)$ définie par :

$$R(u) = \langle f(z)f(z+u) \rangle \quad (3.5)$$

Comme illustré sur la figure 3.21, cette fonction peut être ajustée par une gaussienne ou une fonction exponentielle dont la valeur en 0 correspond à la perturbation quadratique moyenne²³ σ^2 et la largeur à mi-hauteur (HWHM) correspond à la longueur de corrélation L_c . De cette façon nous avons trouvé les paramètres résumés dans le tableau 3.2.

23. $R(0) = \langle f(z)^2 \rangle$, et $\sigma^2 = \left\langle \left(f(z) - \overline{f(z)} \right)^2 \right\rangle = \langle f(z)^2 \rangle$ lorsque la moyenne est nulle comme c'est le cas ici.

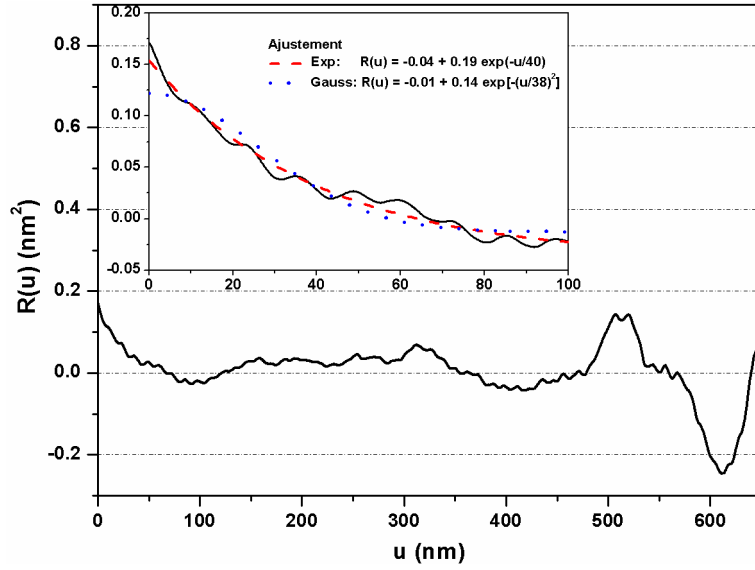


FIGURE 3.21 – Fonction d'autocorrélation associée à l'interface GaAs/AlOx. Quand u augmente, $R(u) = \langle f(z)f(z+u) \rangle$ est évaluée avec moins de points, ce qui explique les fortes fluctuations de cette fonction. Les ajustements exponentiel et gaussien, montrés en encart ont donc été effectués sur la portion décroissante de $R(u)$, c'est-à-dire jusqu'à $u \approx 100$ nm.

Interface	GaAs/AlAs	AlGaAs/AlAs	GaAs/AlOx	AlGaAs/AlOx
σ^2 (nm ²)	0.03	0.03	0.16	0.23
σ (nm)	0.17	0.17	0.40	0.48
L_c (nm)	3	3	40	23

TABLE 3.2 – Résultats bruts de l'analyse des images HAADF.

Trois choses sont à noter. Tout d'abord nous avons mesuré, par une observation directe, la rugosité moyenne des interfaces GaAs/AlAs et AlGaAs/AlAs après la croissance EJM. Nous avons trouvé une valeur, $\sigma=0.17$ nm, en bon accord avec les données publiées que nous avons présentées en section 2.2.1. Il convient ensuite de remarquer l'impact très fort de l'oxydation sur ces interfaces dont la rugosité augmente d'un facteur ≈ 2.5 . L'effet d'une telle rugosité sur les pertes de propagation optiques sera traitée

en section 4.1. Enfin nous souhaitons mettre en avant le fait que toutes ces mesures ont été faites à partir de lames minces d'épaisseur non nulle. Cette caractéristique, non contournable, des lames MET entraîne un possible lissage des interfaces dû à des effets de projections. Ce problème, menant à une sous-estimation de la rugosité, est traité en détails ci-dessous.

Effets de fenêtrage et de projection

La mesure de la rugosité des interfaces à partir des images HAADF peut être affectée par deux effets liés au MET. D'une part, la taille finie des images engendre une perte d'informations sur le processus stochastique infini que l'on souhaite caractériser, et les valeurs σ^2 et L_c sont donc approchées. D'autre part, le MET est une technique de projection, et l'information sur la rugosité en deux dimensions (2D) est retranscrite en une dimension (1D). Par un effet de lissage, la rugosité observée se retrouve diminuée par rapport à la rugosité réelle. Ces deux effets sont très importants car c'est seulement en estimant leur impact que l'on peut déduire les valeurs réelles de l'amplitude et de la longueur de corrélation de la rugosité des interfaces dans notre dispositif. Ci-dessous nous décrivons donc comment nous avons extrapolé les valeurs caractéristiques de la rugosité à partir des mesures sur les images MET.

L'effet de la taille des images a été traité par Goodnick *et al.* [108]. Pour cela ils ont généré numériquement une interface 1D dont la rugosité, d'amplitude σ_0 et longueur de corrélation L_{c_0} fixées arbitrairement, est caractérisée par une statistique gaussienne ou exponentielle. En calculant la fonction d'autocorrélation d'une partie de longueur variable du profil, ils ont déterminé quelles étaient l'amplitude σ et la longueur de corrélation L_c de la rugosité en fonction de la taille des images. Ils ont ensuite comparé ces résultats avec les valeurs nominales σ_0 et L_{c_0} . Comme on s'y attend, σ et L_c sont sous-estimées à mesure que la taille de l'image est réduite, en raison de la perte d'information d'un point de vue statistique. Néanmoins, lorsque cette taille dépasse un seuil L^* , les estimations correspondent aux valeurs réelles.

Puisqu'il n'est pas possible de déterminer L^* sans connaître les valeurs réelles des paramètres associés à la rugosité, nous avons nous-mêmes réduit la taille de la fenêtre d'analyse afin de voir si σ et L_c variaient ou non, traduisant le fait que la taille des images était inférieure ou supérieure respectivement à L^* . Pour cela nous avons calculé la fonction d'autocorrélation d'une partie de nos images de taille variable.

Dans le cas des interfaces GaAs/AlOx et GaAs/AlAs on constate que la valeur de σ^2 reste constante jusqu'à des tailles de fenêtres d'analyse faisant environ 3/4 de la taille initiale. Au-delà on constate que la valeur de σ^2 diminue à mesure que la taille de la fenêtre est réduite. On peut donc affirmer que la taille des images était suffisamment grande pour faire une évaluation correcte de σ^2 pour ces deux types d'interfaces. En revanche, nous avons constaté que dès que l'on réduisait la taille des fenêtres d'analyse, la valeur de L_c changeait. Il est donc probable que la taille des images n'était pas suffisante pour faire une bonne évaluation de L_c . Pour les interfaces AlGaAs/AlOx, cette réduction en fonction de la taille de la fenêtre se manifeste pour σ^2 ainsi que pour L_c . Malheureusement il n'est pas possible d'extrapoler les valeurs nominales à partir des valeurs mesurées et nous pouvons juste affirmer que ces valeurs sont des bornes inférieures. Par ailleurs, compte tenu des efforts produits pour fabriquer des lames minces sur des longueurs les plus grandes possibles, il nous semble peu envisageable d'obtenir des images plus grandes pour une meilleure estimation de la rugosité des interfaces.

Le second problème important est celui de la projection de la rugosité 2D, à travers l'épaisseur non nulle de l'échantillon, pour former l'image MET. Il a été étudié par Goodnick *et al.* ainsi que Hÿtch *et al.* [108, 109]. Pour estimer l'effet de la projection ils ont généré mathématiquement une surface rugueuse, telle celle représentée sur la figure 3.22, dont la fonction d'autocorrélation est gaussienne. Cette surface représente la fonction de rugosité 2D, $f_{2D}(\vec{r})$, de l'interface GaAs/AlOx, dont les paramètres σ_0^2 et L_{c0} sont fixés arbitrairement. En projetant l'intensité moyenne du profil 2D selon une direction on obtient un profil de rugosité 1D, $f(z)$, tel que celui analysé à partir des images HAADF comme celle représentée sur la figure 3.20. On détermine alors les paramètres σ^2 et L_c et on les compare aux valeurs 2D. Goodnick *et al.* ont généré ainsi 50 surfaces différentes afin de déterminer les fluctuations statistiques des paramètres mesurés [108].

L'effet de l'épaisseur de la lame mince sur σ est montré sur la figure 3.23a dans le cas de longueurs de corrélation longue ou courte. Pour des petites longueurs de corrélation, comme dans le cas des échantillons non oxydés, l'amplitude de la rugosité 1D décroît très rapidement à cause du moyennage causé par l'épaisseur non nulle de la lame mince. Pour de plus grandes longueurs de corrélation, comme dans le cas des échantillons oxydés, cet effet de moyennage est moins prononcé. Ici les deux tracés correspondent à des longueurs de corrélation "virtuelle", L_v , de 45 et 5 nm, différentes de celles de nos interfaces. Afin de retrouver dans quel rapport l'épaisseur de la lame réduit σ , nous avons

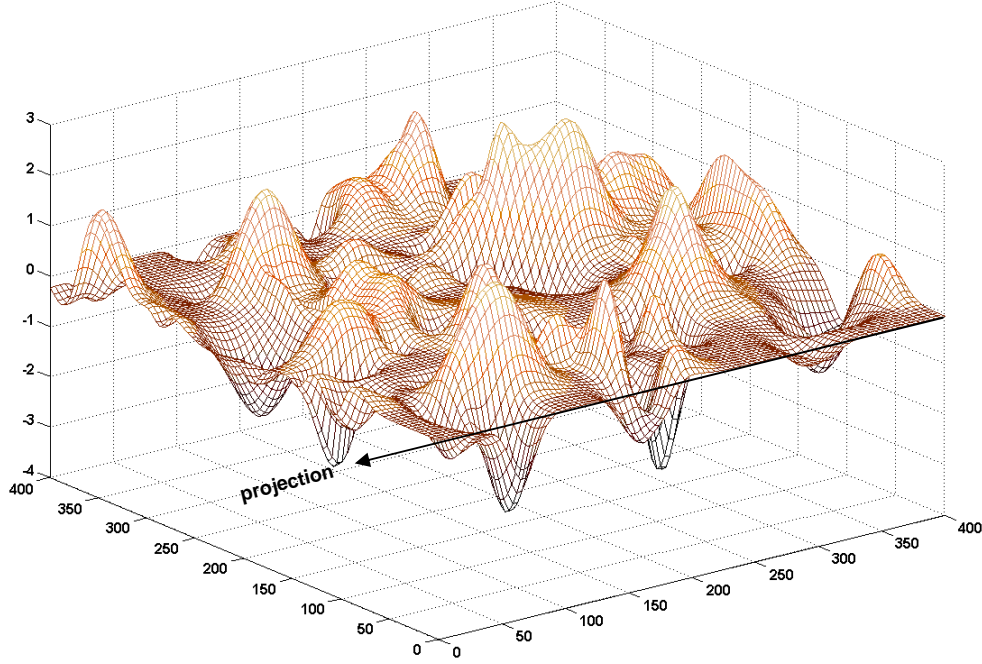


FIGURE 3.22 – Surface générée aléatoirement et dont la rugosité est décrite par un modèle Gaussien. Dans le MET, les électrons projettent l’objet 3D en créant une image 2D. L’interface 2D est traduite en une interface 1D. Les valeurs caractéristiques du profil 1D (amplitude et longueur de corrélation) sont réduites par rapport à celles du profil 2D.

déterminé l’épaisseur virtuelle, th_v , de nos échantillons correspondant à L_v des tracés. Le rapport “épaisseur réelle de la lame/longueur de corrélation de l’interface”, th_r/L_c , vaut 100/40 pour les interfaces GaAs/AlOx, 100/23 pour les interfaces AlGaAs/AlOx et 32/3 pour les interfaces (Al)GaAs/AlAs²⁴. Ce rapport étant égal au rapport th_v/L_v nous avons pu en déduire l’épaisseur virtuelle qui vaut $th_v = th_r \times L_v/L_c \approx 110, 195, 50$ nm pour les interfaces GaAs/AlOx, AlGaAs/AlOx et (Al)GaAs/AlAs respectivement. Sur la figure 3.23a nous avons représenté par des étoiles le cas de ces interfaces. On constate que les valeurs déduites de l’analyse de nos images HAADF sont sous-estimées d’un facteur 1.3 à 2.0.

La variation de la longueur de corrélation mesurée en fonction de la valeur 2D réelle est représentée sur la figure 3.23b. On constate qu’elle varie linéairement dans un rapport de 76 % (cas du modèle Gaussien). Par ailleurs, on note que pour les plus grandes

24. (Al)GaAs fait soit référence à une couche de $Al_{0.7}Ga_{0.3}As$ soit à une couche de GaAs.

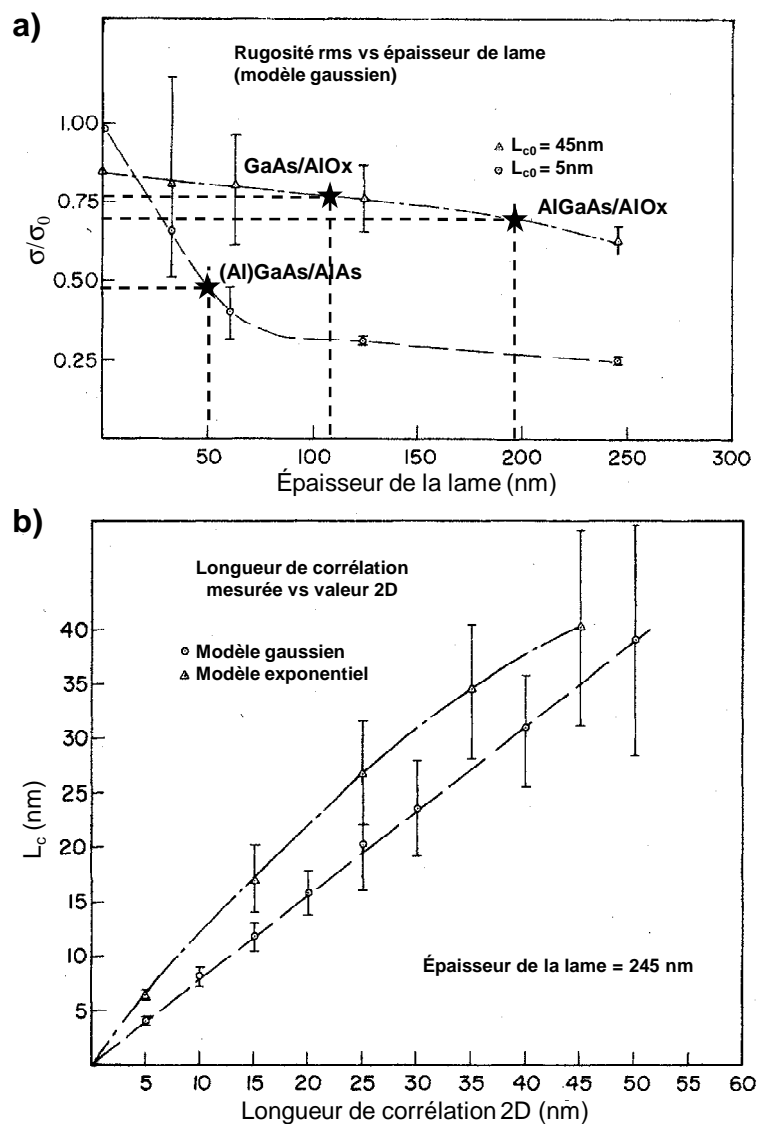


FIGURE 3.23 – Effet de projection sur la mesure 1D des paramètres de rugosité : a) variation du rapport amplitude de la rugosité mesurée sur amplitude réelle en fonction de l'épaisseur de la lame mince ; b) variation de la longueur de corrélation mesurée avec la longueur réelle (adapté de [108]).

longueurs de corrélations, il y a une grande variance des valeurs mesurées. Cet effet est moins une conséquence de la projection, qu'une conséquence liée à une taille d'image trop petite dont on a parlé plus tôt.

En tenant compte de ces effets nous avons estimé la valeur réelle des paramètres caractéristiques de la rugosité des différents types d'interfaces rencontrées dans nos guides d'ondes. Ces résultats sont résumés dans le tableau 3.3.

Interface	σ (nm)	σ_r (nm)	$\Delta\sigma_r$ (nm)	L_c (nm)	L_{cr} (nm)	ΔL_{cr} (nm)
GaAs/AlAs	0.17	0.37	± 0.08	3	4	± 0
AlGaAs/AlAs	0.17	0.37	± 0.08	3	4	± 0
GaAs/AlOx	0.40	0.53	± 0.08	40	53	± 14
AlGaAs/AlOx	0.48	0.69	± 0.06	23	30	± 7

TABLE 3.3 – Amplitude et longueur de corrélation de la rugosité des différentes interfaces étudiées : valeurs brutes et réelles (r en indice).

On remarque que les valeurs extrapolées de l'amplitude et la longueur de corrélation de la rugosité des interfaces sont quelques dizaines de pourcents plus grandes que les valeurs mesurées sur les images. Il est donc important de bien tenir compte des effets de fenêtrage et de projection lors de l'évaluation de la rugosité des interfaces.

Modification des couches adjacentes aux couches d'AlOx

Nous avons aussi cherché à savoir si l'oxydation engendrait des modifications structurales des interfaces. Pour cela, nous avons utilisé l'imagerie HRTEM qui est parfaitement adaptée à ce type d'étude. Nous nous sommes donc focalisés sur une interface GaAs/AlOx comme celle de la figure 3.24a. Sur cette figure, nous avons calculé la transformée de Fourier rapide (FFT) en différentes régions²⁵.

Sur la figure 3.24a, la partie sombre en haut à droite correspond au GaAs. Il est d'ailleurs aisé d'y voir les rangées atomiques, plus claires, à l'origine des spots qui ap-

25. Tout comme pour un signal électronique, optique ou autre, la FFT d'une image numérique fait ressortir les fréquences présentes. Dans le cas des images HRTEM, ces fréquences correspondent aux distances interréticulaires du/des matériau(x) mono- ou polycristallin(s) présent(s) dans l'image. La FFT peut donc être assimilée à un diagramme de diffraction, et par conséquent elle peut permettre d'identifier la nature de ce(s) matériau(x).

paraissent sur la FFT (figure 3.24b). Ces spots correspondent aux familles de plans $\{200\}$, $\{111\}$, et $\{400\}$ du GaAs. À la limite entre la zone sombre et la zone claire de la figure 3.24a, la FFT (figure 3.24c) suggère que suite à l'oxydation des couches d'AlAs, le GaAs est amorphe. Notons que d'après le contraste de l'image, la région plus claire est censée correspondre à l'AlOx tout comme sur la figure 3.26. Toutefois, sur la FFT de la région (d) montrée sur la figure 3.24d, deux spots apparaissent et peuvent être associés à la famille de plan $\{400\}$ du GaAs. D'un autre côté, la FFT de la région (e) en figure 3.24e, qui se trouve au même niveau que la région (d), ne révèle que la présence d'un matériau amorphe.

La diversité de ce que l'on observe autour de l'interface nous laisse penser qu'au cours de l'étape d'oxydation sélective, les couches adjacentes s'oxydent aussi aux abords des interfaces. Cette oxydation ne doit pas être confondue avec l'oxydation latérale humide pour laquelle des couches d' $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ avec $x < 0.7$ ne peuvent être oxydées [78]. Il s'agit plutôt d'une conséquence de l'oxydation sélective des couches d'AlAs. En effet, d'après le diagramme de phase de Ga-As-O [110], les réactions suivantes peuvent avoir lieu :

- $4\text{Ga} + \text{As}_2\text{O}_3 \rightarrow 2\text{GaAs} + \text{Ga}_2\text{O}_3$
- $2\text{Ga} + \text{As}_2\text{O}_3 \rightarrow 2\text{As} + \text{Ga}_2\text{O}_3$
- $2\text{GaAs} + \text{As}_2\text{O}_3 \rightarrow 4\text{As} + \text{Ga}_2\text{O}_3$

Or, nous avons vu en section 2.2.2 que lors de l'oxydation de l'AlAs, le composé As_2O_3 était produit. L' As_2O_3 , circule ensuite dans les canaux de transports localisés, entre autre, aux interfaces avec les couches adjacentes. Dans ces conditions, on comprend que la troisième réaction présentée ci-dessus puisse avoir lieu. Cette hypothèse est soutenue par la présence d'un reste de GaAs faiblement cristallin (région (d)) du côté clair de l'interface. La modification de contraste autour de cette zone est attribuée à la substitution des éléments As par de l'O dans le GaAs. Le Ga_2O_3 , de Z moyen plus faible que celui du GaAs, change les conditions de diffraction et d'absorption des électrons lors de la traversée de la lame mince. Cette hypothèse est confirmée par de l'imagerie chimique dans la section suivante.

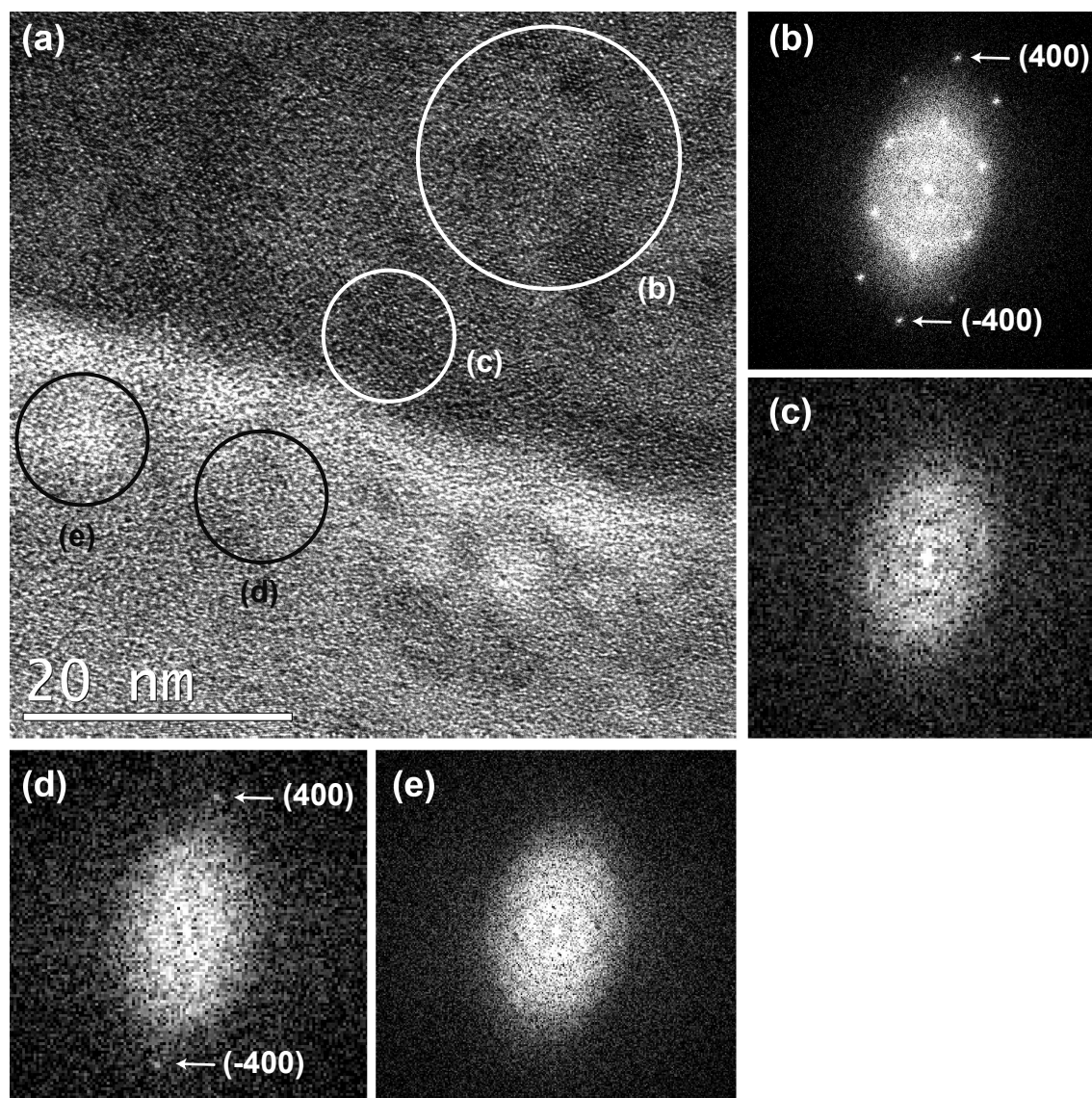


FIGURE 3.24 – Caractérisation structurale d’une interfaces GaAs/AlOx : a) image HR avec en haut à droite une couche de GaAs et en bas à gauche une couche d’AlOx ; b) FFT de la zone (b) présentant les tâches caractéristiques du GaAs en axe de zone (110) ; c) FFT de la région (c) traduisant l’aspect amorphe du GaAs à cet endroit ; d) FFT de la zone (d) exhibant des détails caractéristiques du GaAs légèrement cristallin alors que e) la FFT de la zone (e) est typique d’un matériau amorphe.

3.4.2 Caractérisation chimique et structurale des effets de l'oxydation sélective

Cartographie chimique

Afin d'aller plus loin dans la compréhension des effets de l'oxydation latérale humide dans nos guides d'ondes, nous avons réalisé une caractérisation des couches d'AlOx par imagerie filtrée en énergie (EFTEM). Nous avons acquis des cartographies chimiques de deux types de couches présentes dans le cœur guidant : GaAs/AlOx/GaAs (que l'on appellera type 1) et GaAs/AlOx/Al_{0.7}Ga_{0.3}As (que l'on appellera type 2). Dans chaque cas, nous avons fait une carte de l'aluminium et une de l'oxygène, le premier permettant de localiser la couche d'AlOx et le second de confirmer ou d'infirmer l'oxydation des couches adjacentes. Les cartes EFTEM ont été réalisées en plaçant une fenêtre en énergie de 20 eV autour de la raie *K* de l'oxygène ou de la raie *L* de l'aluminium. Les images, caractéristiques de la distribution d'un élément chimique, correspondent à la différence entre une image *post-edge* et le signal de fond extrapolé à partir de deux images *pre-edge* (technique des trois fenêtres [101]). Les plus grandes concentrations en l'élément chimique étudié sont représentées par une intensité plus grande sur l'image finale.

Les résultats de cette étude sont présentées sur la figure 3.25. Les figures 3.25a et b sont des cartes EFTEM d'une couche d'AlOx de type 1 et 2 respectivement. Sur chacune des images nous avons fait un profil d'intensité le long d'une ligne parallèle à la direction de croissance, et moyenné sur environ 30 nm de largeur. Ces profils, représentés sur la figure 3.25c, permettent de définir l'étendue de l'oxygène en mesurant leur largeur à mi-hauteur. Dans le cas des couches de type 1, l'oxygène s'étend sur 39 nm contre 45 nm pour les couches de type 2, alors que l'épaisseur nominale d'Al_{0.98}Ga_{0.02}As est de 37.5 nm avant oxydation.

Nous n'avons pas pu utiliser les cartographies d'Al pour évaluer précisément l'épaisseur des couches d'AlOx. Au-delà des problèmes de dérive souvent présents dans ce type d'acquisition²⁶ et qui peuvent être corrigés par des algorithmes simples, le rapport signal/bruit des images était trop faible. Pour cette raison, nous avons décidé de nous tourner vers les images HAADF présentées en figures 3.19 pour localiser l'aluminium. En effet, sur ces images la présence de l'Al est traduite par une très faible intensité

26. Les acquisitions sont faites sur une durée au cours de laquelle l'échantillon peut se déplacer. Les trois images sont donc décalées les unes par rapport aux autres.

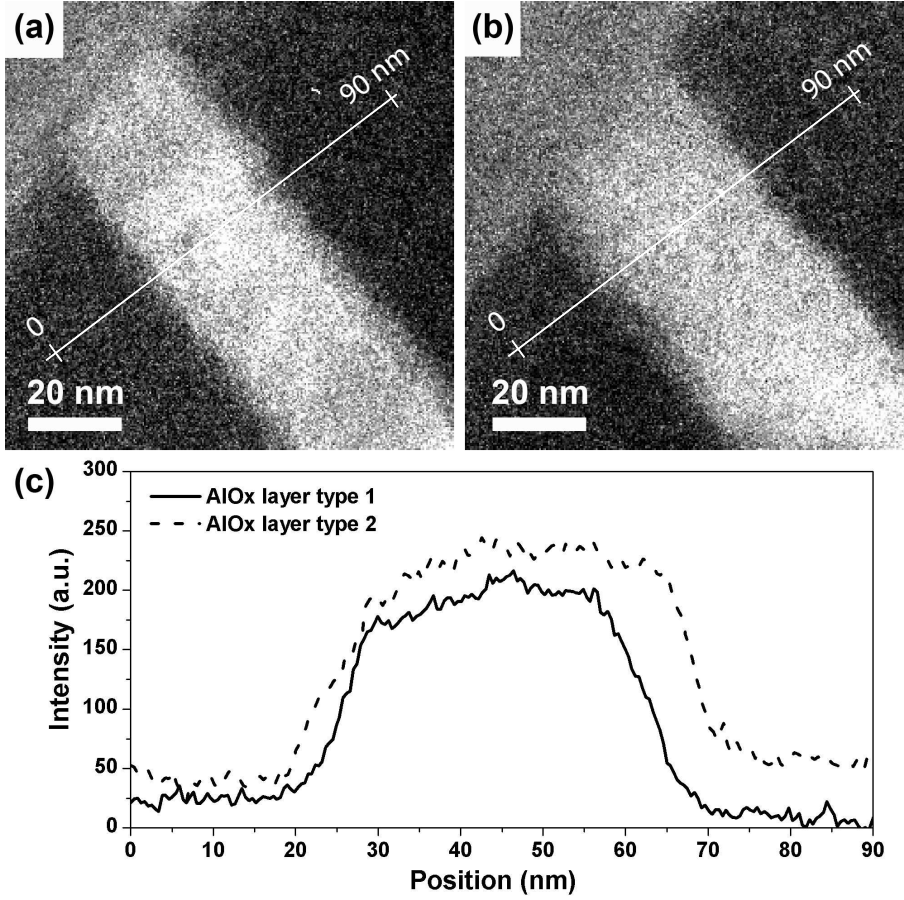


FIGURE 3.25 – Cartographie EFTEM des couches d'AlOx : a) et b) images d'une couche d'AlOx de type 1 et 2 respectivement. Les acquisitions ont été faites en utilisant la raie K de l'oxygène ; c) profils d'intensité de a) et b) le long d'un axe perpendiculaire aux plans des couches.

(centre des images). Nous avons donc trouvé que l'aluminium s'étendait sur 33 nm après l'étape d'oxydation. L'oxygène s'étendant au-delà de la région contenant de l'aluminium, nous en avons conclu que les couches voisines de l'AlOx étaient aussi oxydées. Ce résultat est soutenu par Pickrell *et al.* [80] et Durand *et al.* [42] qui ont aussi constaté aux interfaces, l'oxydation du GaAs voisin d'une couche d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ formée par alliage digital. Dans le cas des couches d'AlOx de type 1, en faisant la différence entre l'épaisseur occupée par l'O et celle occupée par l'Al ($39-33=6$ nm), on conclut que le GaAs est oxydé sur 3 nm à partir de l'interface (en faisant l'hypothèse que l'O progresse également de part et d'autre de la couche d'AlOx). Dans les cas des couches d'AlOx

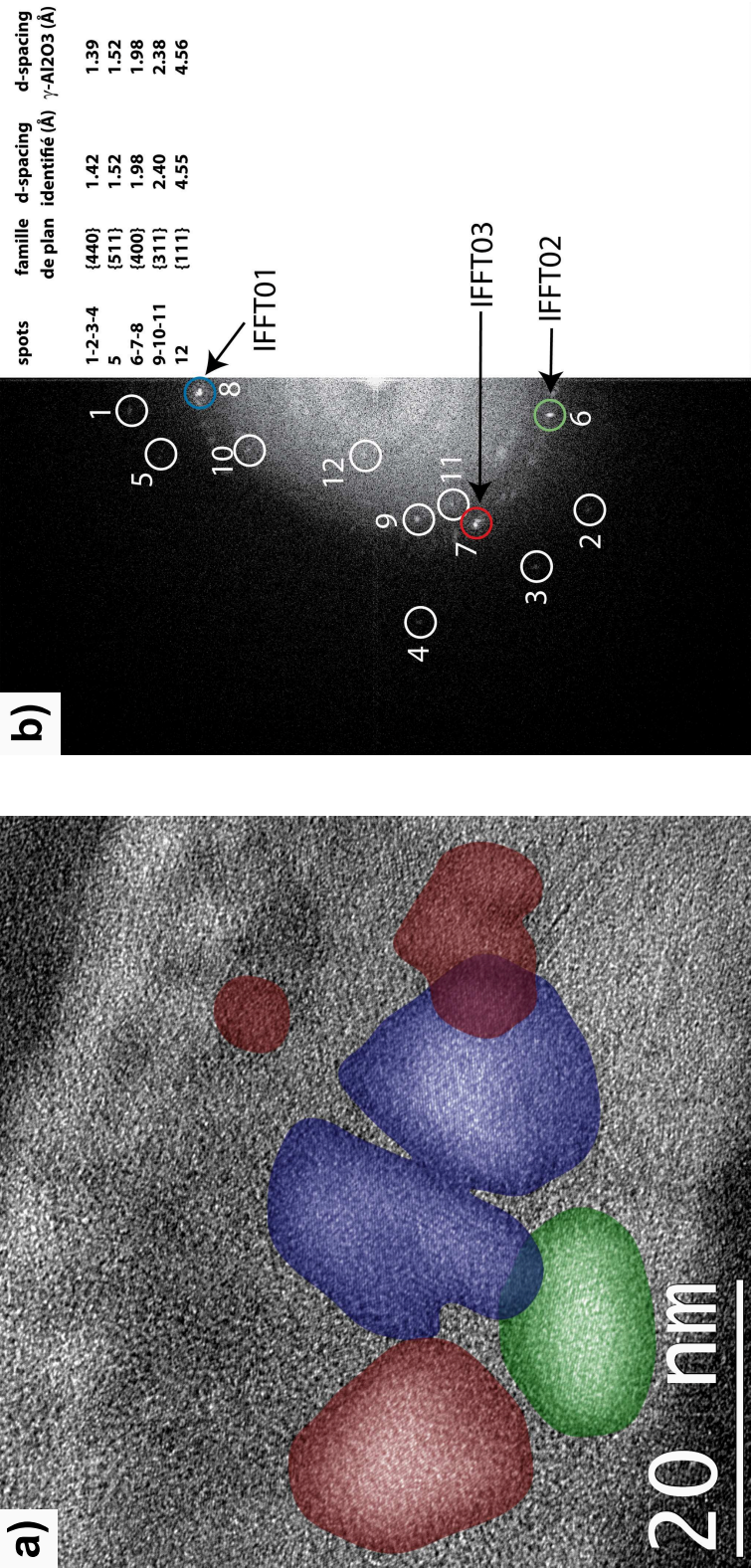


FIGURE 3.26 – Image HRTEM (a) et sa FFT (b) confirmant la présence de grains polycristallins dans une matrice amorphe. Les spots 6, 7 et 8 correspondent à la même fréquence mais à des grains orientés différemment. Une FFT inverse ne faisant intervenir qu’un de ces spots fait ressortir les zones de l’image qui lui ont donné naissance (IFFT01 : bleu ; IFFT02 : vert ; IFFT03 : rouge).

de type 2, nous pouvons raisonnablement penser que le GaAs s'oxyde aussi sur 3 nm, ce qui nous permet de conclure que les couches d' $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ sont oxydées sur 9 nm à partir de l'interface ($45-33-3=9$).

Pour expliquer une oxydation plus importante des couches d'AlGaAs par l'interface, revenons sur leur structure. Ces couches sont des alliages digitaux fabriquées en épitaxiant successivement 3 monocouches (mc) de GaAs et 7 mc d'AlAs (voir annexe B). On peut penser que la première barrière de 3 mc de GaAs s'oxyde à la même vitesse que le GaAs situé à l'autre interface. Une fois cette barrière oxydée, on retrouve de l'AlAs qui s'oxyde plus rapidement que le GaAs.

Structure de l'AlOx

Nous avons aussi porté notre attention sur la micro-structure des couches d'AlOx. D'après les images HAADF (*cf.* Fig. 3.19), les couches d'AlAs font 37.5 nm d'épaisseur avant oxydation. Cette valeur est en parfait accord avec la valeur nominale retenue pour l'épitaxie. Toutefois, après oxydation, les couches d'AlOx ne mesure plus que 33 nm, traduisant une réduction de 12 % de l'épaisseur de ces couches. Cette contraction est un phénomène très commun lors de l'oxydation latérale humide [42, 74], et qui est associé à la formation de grains d'alumine γ ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) dans une matrice d'AlOy amorphe (a-AlOx). Elle s'explique par la réduction du volume par atome d'aluminium qui est de $(2.85 \text{ \AA})^3/4$ dans $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ contre $(3.57 \text{ \AA})^3/4$ dans l'AlAs [46]. Nous avons donc cherché à identifier la structure des couches d'AlOx de nos guides d'ondes.

Lors de l'oxydation latérale humide de couches d'AlAs résultant uniquement en a-AlOx, aucune contraction n'est observée [75]. Nous avons donc formulé l'hypothèse que l'AlOx était un mélange amorphe/polycristallin dans nos guides d'ondes. Afin de confirmer ou d'infirmer cette hypothèse nous avons fait des images HRTEM des couches d'AlOx. Un exemple est donné sur la figure 3.26a où les zones sombres, en haut à droite et en bas à gauche, correspondent à du GaAs et la zone claire centrale correspond à de l'AlOx. Un examen attentif de l'image permet de distinguer des régions cristallisées d'orientations différentes.

De façon à identifier la nature de ces régions, nous avons calculé la FFT de l'ensemble de l'image et l'avons représentée sur la figure 3.26b. Un grand nombre de spots caractéristiques apparaît sur la FFT. Ces spots tendent à décrire des cercles comme

dans le cas de matériaux polycristallins. Nous avons mesuré la distance réticulaire de chacun d'eux et avons confirmé la présence de grains de $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$. Les spots indexés correspondent aux familles de plans indiquées sur la droite de la figure de diffraction. Certaines familles de plans n'apparaissent pas dans la FFT, telles que les familles $\{200\}$, $\{220\}$ et $\{422\}$, probablement à cause de leur trop faible intensité diffractée.

En ne sélectionnant qu'un spot de la FFT et en calculant la FFT inverse, nous pouvons faire ressortir les zones de l'image initiale qui lui ont donné naissance. C'est ce que nous avons fait avec les spots 6, 7 et 8 qui correspondent à la même fréquence, et donc au même angle de Bragg, mais dont l'orientation est différente. Par conséquent leur vecteurs de diffraction ont la même norme mais une direction différente. Les zones vertes, rouges et bleues qui apparaissent en surimpression sur la figure 3.26 correspondent aux spots 6, 7 et 8 respectivement. De cette façon, nous avons pu localiser les grains et estimer leur forme et leur taille. Nous avons constaté qu'ils se trouvent au centre de la couche d'AlOx et que leur taille est comprise entre 10 et 20 nm.

La présence de deux phases distinctes d'alumine (amorphe et polycristalline) nous permet d'envisager, sur le même modèle que les interfaces GaAs/AlOx, un processus supplémentaire de diffusion Rayleigh. En effet, si la différence d'indice entre les deux phases et la rugosité de leurs interfaces sont suffisantes, les modes guidés dans le cœur de la structure peuvent être diffusés en quantité non négligeable. Cette question sera traitée en section 4.1.2.

Front d'oxydation

Finalement, nous souhaitons souligner une particularité du processus d'oxydation. Sur la figure 3.27, qui représente le front d'oxydation, nous constatons que celui-ci n'est pas homogène. À droite de l'image se trouve l'AlOx, à gauche se trouve l' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ et dans les coins supérieur droit et inférieur gauche se trouve du GaAs. Le front d'oxydation semble avancer plus rapidement au milieu que sur les bords de la couche d'AlOx.

Au niveau de la zone non oxydée, on perçoit deux fines rayures sombres aux premier et second tiers de l'épaisseur de la couche. Ce changement de contraste révèle la présence de monocouches de GaAs qui ont été insérées afin de construire un alliage digital correspondant à $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ (cf annexe B). La position de ces deux monocouches coïncide parfaitement avec les limites des différentes zones de progression de l'AlOx. Cela n'a sans doute aucune influence sur le résultat final de l'oxydation dans notre cas,

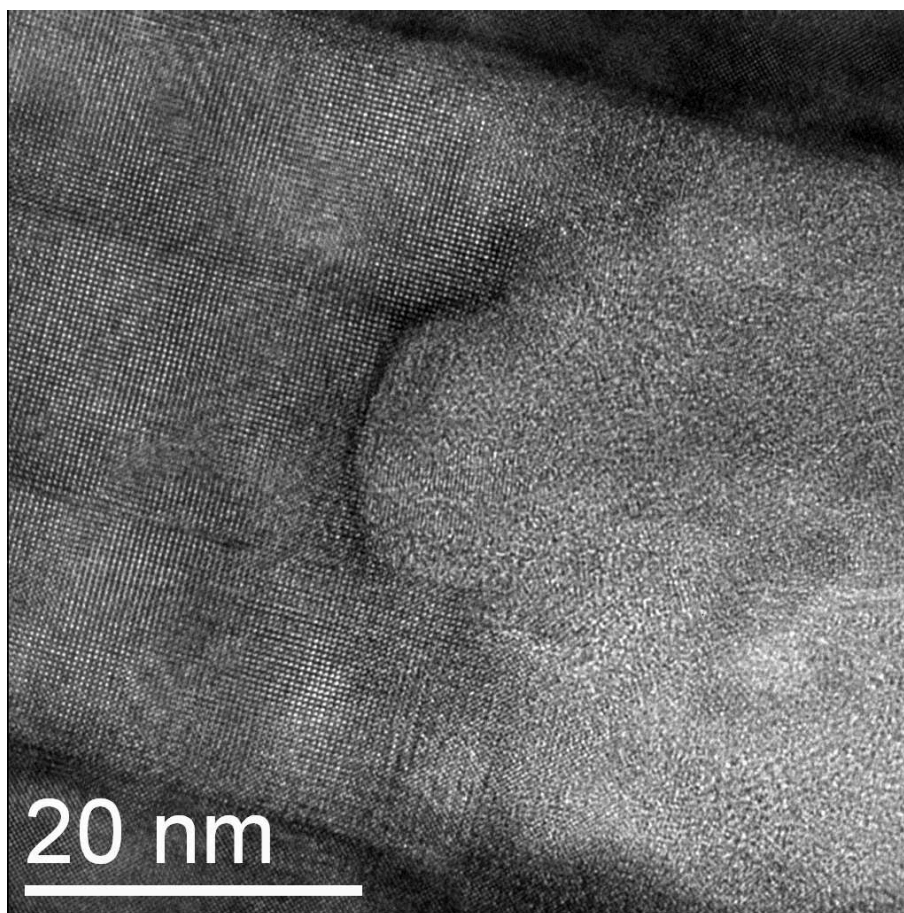


FIGURE 3.27 – Image HRTEM du front d’oxydation. On constate une avancée non homogène de celui-ci. Cette inhomogénéité est sans doute à mettre en lien avec la présence de deux fines couches de GaAs insérées dans la couche d’AlAs.

mais on peut se poser la question de leur influence dans le cas de l’oxydation d’alliages digitaux avec de plus grandes concentrations de Ga. En effet, augmenter la concentration de Ga se traduirait par l’insertion de couches de GaAs plus épaisses qui pourraient gêner complètement l’oxydation.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats de notre étude par microscopie électronique en transmission sur les effets de l'oxydation latérale humide dans nos guides d'ondes non-linéaires. Après une description de l'outil d'analyse et de ses différents modes de fonctionnement, nous avons comparé trois différentes techniques de préparation des lames minces pour les études MET dans le cas des guides d'ondes oxydés. La principale difficulté était d'amincir une zone d'intérêt de quelques μm^2 dans un échantillon fragile. Nous avons défini une liste de contraintes spécifiques à la nature de nos échantillons et à l'étude MET que nous souhaitions conduire. Même si le PIPS permet de préparer des lames minces d'excellente qualité, nous n'avons pas réussi à amincir exactement un guide d'ondes. De son côté, le FIB permet de réaliser rapidement des lames minces précisément localisées mais la qualité des lames n'a pas satisfait tous nos critères, puisque nous n'avons pas pu faire d'imagerie HRTEM avec. L'IS a été la seule technique à satisfaire toutes les contraintes que nous avons fixées. Grâce à sa platine de micropositionnement couplée à une caméra CCD *in situ* et à son faisceau d'Ar⁺ à faible énergie d'incidence très rasante, il nous a permis de préparer des lames minces de bonne qualité, adaptées à l'imagerie HRTEM et HAADF ainsi qu'à la spectroscopie EELS. Cette technique est adaptée à la préparation, sans procédure additionnelle, de lames minces pour la microscopie électronique en transmission à partir d'échantillons à fortes contraintes géométriques et pour lesquelles les dégâts d'amorphisation doivent être minimales.

Une fois la préparation de lames minces établie, nous avons caractérisé la rugosité des interfaces GaAs/AlAs et AlGaAs/AlAs des échantillons non oxydés, et les interfaces GaAs/AlOx et AlGaAs/AlOx des échantillons oxydés. Après avoir défini une procédure de traitement des images HAADF, nous avons mesuré l'amplitude et la longueur de corrélation de la rugosité de chacune des interfaces. Nous avons ensuite pris en compte l'épaisseur non nulle des lames minces pour extrapoler les valeurs réelles à partir des valeurs mesurées. Nous avons constaté une augmentation importante de l'amplitude de la rugosité, induite par l'étape d'oxydation. Nous verrons dans le chapitre suivant comment ces caractéristiques structurales peuvent être associées à des pertes de propagation.

Nous avons aussi supposé, à travers l'analyse d'images HRTEM, que les couches adjacentes aux couches d'AlOx s'oxydaient *via* les interfaces. Cette oxydation a été

confirmée grâce à l'étude des cartographies EFTEM et des images HAADF.

Enfin, nous avons montré que les couches d'AlOx localisées dans le cœur de notre structure guidante, étaient constituées de grains polycristallins de γ -Al₂O₃ contenus dans une matrice d'alumine amorphe. Nous avons souligné que ces deux phases pouvaient être à l'origine de nouvelles interfaces responsables de diffusion Rayleigh supplémentaire. Leur influence sera aussi étudiée dans le chapitre suivant.

Chapitre 4

Vers un OPO intégré

Dans le but de réaliser un oscillateur paramétrique optique intégré en GaAs/AlOx, nous avons mené une étude poussée sur les conditions requises pour atteindre cet objectif. À partir des observations au MET nous avons évalué l'influence de l'étape d'oxydation sur les pertes de propagation des guides d'ondes. Nous montrons dans la première partie de ce chapitre que les résultats de nos calculs, prenant en compte l'amplitude et la longueur de corrélation de la rugosité des interfaces, sont très proches des valeurs expérimentales. Ensuite nous exposons les résultats de nos mesures d'amplification paramétrique qui nous ont permis d'établir le coefficient de gain paramétrique de nos guides. Dans une troisième partie nous présentons l'étude que nous avons effectuée dans le but d'identifier les conditions d'oxydation permettant de minimiser les pertes de propagation. Enfin la dernière partie est dédiée à la conception et la réalisation de miroirs intégrés pour l'obtention de l'oscillation paramétrique. Cette étude prend en compte les résultats des parties précédentes dont dépendent les seuils d'oscillation des différents types d'OPO que nous avons considérés.

4.1 Modélisation des pertes dues à la rugosité des interfaces

Nous avons déterminé, dans la section 3.4.1, les paramètres caractéristiques des interfaces avant et après oxydation. Ces paramètres sont résumés dans le tableau 3.3. Nous avons ensuite entrepris d'établir un lien entre la rugosité typique des interfaces et les pertes par diffusion qu'elle générerait.

Dans les années 90, Lacey et Payne ont développé un modèle analytique pour relier les pertes de propagation dans les guides d'ondes à la rugosité de leurs flancs [111,112]. Ce modèle a ensuite été essentiellement utilisé pour anticiper ou constater les problèmes de gravure des guides [113–115].

Dans cette partie nous décrivons ce modèle et expliquons comment nous l'avons adapté au problème de la rugosité aux interfaces dans des guides d'ondes multicouches. Nous exposons les résultats des modélisations et évaluons leur incertitude. Bien que notre adaptation simplifie grandement le problème des pertes dues à la rugosité, elle nous a permis, au cours de cette thèse dévolue à bien d'autres aspects, d'établir, de manière approchée, l'influence de la rugosité. Nos résultats indiquent que la rugosité des interfaces engendrée lors de l'étape d'oxydation pourrait être responsable de l'essentiel des pertes de propagation.

4.1.1 Description de la rugosité aux interfaces

Les pertes optiques dans un guide d'ondes, à priori transparent, ont principalement deux origines : l'absorption (linéaire, par porteurs libres²⁷, à deux photons²⁸) ou diffusion, provenant des imperfections dans la géométrie du guide (rugosité des flancs, rugosité aux interfaces entre différentes couches, inhomogénéités des couches). Comme nous l'avons vu, la rugosité des interfaces GaAs/AlOx est bien plus grande que la rugosité des interfaces GaAs/AlAs initiales. En même temps les pertes passent de 0.1 à 0.5 cm⁻¹. Afin de vérifier que la rugosité post-oxydation puisse justifier une telle augmentation des pertes nous avons utilisé le modèle de Lacey et Payne [111]. Celui-ci assimile le guide à une antenne et les imperfections à des sources de courant équivalentes. Une expression analytique du champ lointain, correspondant à l'énergie diffusée par les imperfections, est déterminée et l'on peut alors en déduire les pertes de puissance dues à la rugosité.

Considérons le guide plan décrit par la figure 4.1a : x est la direction de croissance

27. L'absorption par porteurs libres résulte de la présence d'impuretés dans le matériau. Dans notre cas les matériaux utilisés sont non dopés et l'on peut négliger ce type d'absorption.

28. L'absorption à deux photons (ADP) étant un processus non-linéaire, elle ne se manifeste en quantité non négligeable que pour de fortes puissances guidées. Dans le cas particulier de nos guides, il a été montré que l'ADP était de l'ordre de 10 cm/GW vers 1.55 μm [116]. Or, dans nos expériences, les puissances mises en jeu sont toujours inférieures à 1 MW/cm² ce qui n'entraîne que des pertes négligeables.

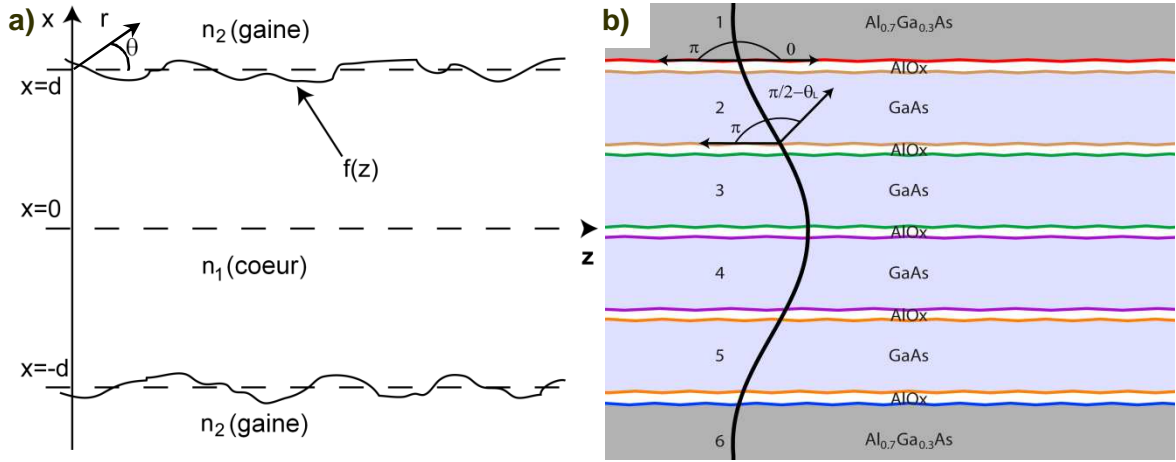


FIGURE 4.1 – Interfaces rugueuses dans un guide plan : a) guide monocouche ; b) notre guide multicouche partiellement oxydé.

et z la direction de propagation des modes propres (le guide est invariant par translation selon la direction y). Les indices du cœur et de la gaine (substrat et superstrat) sont n_1 et n_2 respectivement mais le modèle présenté peut être appliqué à des guides asymétriques, c'est-à-dire pour lesquels $n_{\text{substrat}} \neq n_{\text{superstrat}}$. L'épaisseur nominale du cœur est $2d$ mais les interfaces cœur/gaine sont rugueuses. Cette rugosité est décrite par une fonction stochastique $f(z)$ qui peut être différente pour les deux interfaces. L'indice de réfraction de la structure peut donc être décrite par la fonction suivante :

$$n^2(x, z) = n_2^2 + (n_1^2 - n_2^2)H[d + f(z) - |x|]$$

où $H[d + f(z) - |x|]$ est la fonction de Heaviside, définie par :

$$\begin{aligned} H(\alpha) &= 0 \text{ pour } \alpha < 0 \text{ d'où } n^2(x, z) = n_2^2 \text{ pour } |x| > d + f(z) \\ H(\alpha) &= 1 \text{ pour } \alpha > 0 \quad n^2(x, z) = n_1^2 \text{ pour } |x| < d + f(z) \end{aligned}$$

L'équation d'onde peut donc être écrite de la façon suivante :

$$\nabla^2 E_y(x, z) + k_0^2 n^2 E_y(x, z) = k_0^2 (n_2^2 - n_1^2) H[d + f(z) - |x|] E_y(x, z) \quad (4.1)$$

où l'on assume que la solution est un champ $\mathbf{E}(x, z, t)$ de la forme $\mathbf{E} = E_y(x, z) \exp(-i\omega t)$ de façon à ce que le vecteur d'onde dans le vide vérifie :

$$k_0^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0$$

L'équation d'onde 4.1 est une description exacte du processus de radiation mais ne peut être résolue de manière analytique. Néanmoins, il est possible d'obtenir une solution analytique d'une forme approchée de cette équation, en considérant le champ qui se propage dans un guide d'ondes monomode non perturbé (c'est-à-dire sans rugosité) :

$$E = E_{y_0}(x, z) \exp(-i\omega t) = \Phi(x) \exp[i(\beta z - \omega t)]$$

où β est la constante de propagation. À cause de la présence de la fonction de Heaviside, la partie droite de l'équation 4.1 ne dépend que du champ dans le cœur du guide. On résout alors dans un premier temps cette équation avec $E_{y_0}(x, z)$ pour obtenir une approximation du champ rayonné hors du guide. Ensuite le champ dans la partie droite de l'équation d'onde 4.1 est remplacé par le champ du guide non perturbé, $E_{y_0}(x, z)$, et l'équation d'onde devient :

$$\nabla^2 E_y(x, z) + k_0^2 n_2^2 E_y(x, z) = k_0^2 (n_2^2 - n_1^2) H[d + f(z) - |x|] E_{y_0}(x, z) \quad (4.2)$$

Dans cette description, le guide d'ondes peut être assimilé à une antenne : le terme de droite de l'équation 4.2, faisant intervenir le champ connu $E_{y_0}(x, z)$ et la fonction rugosité $f(z)$, décrit le courant qui est la source de radiation depuis le guide d'ondes ; le champ $E_y(x, z)$, solution de l'équation 4.2, décrit le champ résultant dans l'espace. L'équation 4.2 se résout en utilisant la fonction de Green (voir annexe D). Sa résolution s'écrit sous la forme :

$$E_y(r, \theta) \simeq \frac{i\Phi(d)(n_2^2 - n_1^2)k_0^2}{(4\pi n_2 k_0 r)^{1/2}} \tilde{F}(\beta - n_2 k_0 \cos(\theta)) \times \exp[i(\pi/4 - n_2 k_0 r)]$$

où les coordonnées polaires r et θ sont données par le changement de variables suivant :

$$\begin{cases} z = r \cos(\theta) \\ x - d = r \sin(\theta) \end{cases}$$

et \tilde{F} est la transformée de Fourier de la fonction f . Le coefficient de perte par radiation est donné par :

$$\alpha_r = \Phi^2(d)(n_2^2 - n_1^2)^2 \frac{k_0^3}{4\pi n_1} \times \int_0^\pi \tilde{R}(\beta - n_2 k_0 \cos \theta) d\theta \quad (4.3)$$

où $\tilde{R}(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} R(u) \exp(i\Omega u) du$ est la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation, $R(u) = \langle f(z)f(z+u) \rangle$, de la rugosité d'interface. La fonction rugosité

est celle que nous avons déterminée en section 3.4.1. Nous avons donc pu calculer sa fonction d'autocorrélation, que nous avons ajustée à l'aide d'une fonction analytique (voir figure 3.21) afin de pouvoir traiter mathématiquement le problème. Le profil du mode utilisé dans l'équation 4.3 est normalisé de la façon suivante :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \Phi^2(x) dx = 1$$

4.1.2 Approximation simple pour des guides multicouches

Le problème des pertes de radiation engendrées par des surfaces ou interfaces rugueuses est traité depuis longtemps [111, 112, 117, 118] mais n'a été étudié que dans des guides d'ondes simples [119–121], ayant un cœur composé d'un seul matériau (cf. figure 4.1a).

Dans notre cas, la structure étudiée est plus complexe dans la mesure où le cœur guidant est lui-même composé de plusieurs couches, dont les interfaces subissent toutes une déformation au cours du processus d'oxydation latérale humide. Nous n'avons donc pas deux mais dix interfaces rugueuses, à savoir deux interfaces $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/\text{AlOx}$ et huit interfaces GaAs/AlOx (voir figure 4.1b). L'absence, dans la littérature, d'estimation des pertes de radiation dues à la rugosité pour ce type de structures, nous a conduit à une adaptation du modèle de Lacey et Payne [111]. Notre but n'étant pas de se lancer dans une modélisation complexe, mais plutôt d'obtenir des indications plausibles, nous avons décomposé idéalement la structure des guides GaAs/AlOx en six sous-structures "virtuelles". Comme illustré sur la figure 4.1b, les interfaces sont regroupées deux à deux de façon à délimiter une région d'indice n_1 plus élevé que celui (n_2) de ses deux couches voisines. Le cœur de chaque sous-structure et les interfaces associées sont identifiées par un chiffre allant de 1 à 6. Les couches confinantes d' $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ sont considérées semi-infinies. Chacune des sous-structures est caractérisée par un indice de cœur, donné par l'indice du matériau situé entre les deux interfaces rugueuses (n_{GaAs} ou $n_{\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}}$), et un indice de gaine, donné par l'indice du matériau situé de l'autre côté des interfaces (n_{AlOx}).

Le mode dont nous cherchons le niveau de pertes, se propage avec la constante de propagation β calculée précédemment et son profil d'intensité, $\phi(x)$, est déterminé par la méthode de la matrice de transfert [24]. Après avoir déterminé la valeur du champ normalisé $\Phi^2(d) = \Phi_i^2$ à chaque interface i , nous avons calculé les pertes induites par chaque sous-structure i à l'aide de l'équation 4.3, en utilisant les valeurs Φ_i^2 , n_1 et n_2 , σ^2

et L_c . Pour chaque sous-structure, on utilise la même constante de propagation β car elle caractérise le mode se propageant dans la structure réelle. En revanche, l'amplitude du champ aux interfaces, $\phi(d)$, varie d'une sous-structure à l'autre. De même, selon que l'on considère des interfaces GaAs/AlOx ou Al_{0.7}Ga_{0.3}As/AlOx, les indices de réfraction (n_1 et n_2), la déviation quadratique moyenne (σ^2) et la longueur de corrélation (L_c) de la rugosité sont différents. Pour simplifier le problème, nous avons additionné les pertes de chaque sous-structure pour obtenir les pertes dans la structure réelle :

$$\alpha_r = \sum_{i=1}^6 \alpha_{r_i}$$

Par ailleurs, le modèle de Lacey et Payne prend en compte l'énergie diffusée dans toutes les directions faisant un angle de 0 à π radians avec l'axe de propagation du champ. Dans notre situation, nous avons fait de même pour les interfaces AlGaAs/AlOx (sous-structures 1 et 6) puisque l'énergie diffusée hors du cœur est définitivement perdue. En revanche, dans le cas des interfaces GaAs/AlOx (sous-structures 2 à 5) l'énergie diffusée avec un angle inférieur à l'angle limite (θ_L), défini par les lois de Snell-Descartes, ne quitte pas le cœur. Pour ces sous-structures, nous avons donc considéré comme perdue, l'énergie diffusée avec un angle compris entre θ_L et π .

L'intégrale intervenant dans l'expression des pertes dépend de la forme donnée à la fonction d'autocorrélation des profils de rugosité. Il est courant d'ajuster cette fonction avec une fonction exponentielle :

$$R(u) = \sigma^2 \exp\left(-\frac{|u|}{L_c}\right)$$

ou gaussienne :

$$R(u) = \sigma^2 \exp\left(-\frac{u^2}{L_c^2}\right)$$

L'équation 4.3 peut alors être réécrite sous la forme suivante dans le cas d'un ajustement exponentiel :

$$\alpha_r = \Phi^2(d)(n_2^2 - n_1^2)^2 \frac{k_0^3}{4\pi n_1} \times \int_0^\pi \frac{2\sigma^2 L_c d\theta}{1 + L_c^2(\beta - n_2 k_0 \cos \theta)^2} \quad (4.4)$$

ou bien sous la forme suivante dans le cas d'un ajustement gaussien

$$\alpha_r = \Phi^2(d)(n_2^2 - n_1^2)^2 \frac{k_0^3}{4\pi n_1} \times \int_0^\pi \sigma^2 L_c \sqrt{\pi} \exp\left[-\frac{L_c^2(\beta - n_2 k_0 \cos \theta)^2}{4}\right] d\theta \quad (4.5)$$

Dans ces deux expressions nous avons évalué les intégrales numériquement. Finalement nous avons évalué que les pertes de propagation induites par la rugosité des interfaces sont de l'ordre de $0.26 \pm 0.02 \text{ cm}^{-1}$. Ces résultats obtenus sont de l'ordre de grandeur des valeurs induites par l'étape d'oxydation et dont les mesures sont de l'ordre de 0.4 cm^{-1} . Étant donnée la simplification du problème, ces résultats ne traduisent en aucun cas la réalité "quantitative" des pertes par diffusion. Ils constituent néanmoins une première approximation, suffisamment proche de la réalité pour considérer que la rugosité des interfaces, induite lors de l'étape d'oxydation latérale humide, est la principale source de pertes dans nos guides d'ondes. Ceci est d'autant plus vrai que la valeur des paramètres caractéristiques de la rugosité, évaluée en section 3.4.1, est une limite inférieure. Les pertes estimées, variant linéairement avec σ^2 , correspondent donc elles aussi à une limite inférieure.

4.1.3 Incertitudes sur les évaluations numériques

L'hypothèse retenue pour le calcul des pertes, notamment la décomposition "incohérente" du cœur multicouche en six guides monocouches, est assez forte mais conserve un sens physique : la constante de propagation β utilisée dans chacun des six guides est égale à celle du mode fondamental de la vraie structure multicouche. Il est intéressant de noter l'influence, sur les estimations numériques précédentes, de la variation de certains paramètres tels que :

- la longueur de corrélation,
- la variance σ^2 de la rugosité,
- l'épaisseur des couches d'AlOx,
- l'indice de réfraction de l'AlOx,
- la température,
- la longueur d'onde,
- la polarisation du champ électrique.

Sur la figure 4.2 nous avons représenté la variation des pertes de propagation en fonction de l'évolution des paramètres caractéristiques des profils de rugosité, à savoir la moyenne quadratique σ^2 et la longueur de corrélation L_c , et ce dans le cas des interfaces GaAs/AlOx. La fonction d'autocorrélation est usuellement ajustée par une fonction de type exponentielle ou gaussienne (cf. figure 3.21), dont le choix modifie la forme de

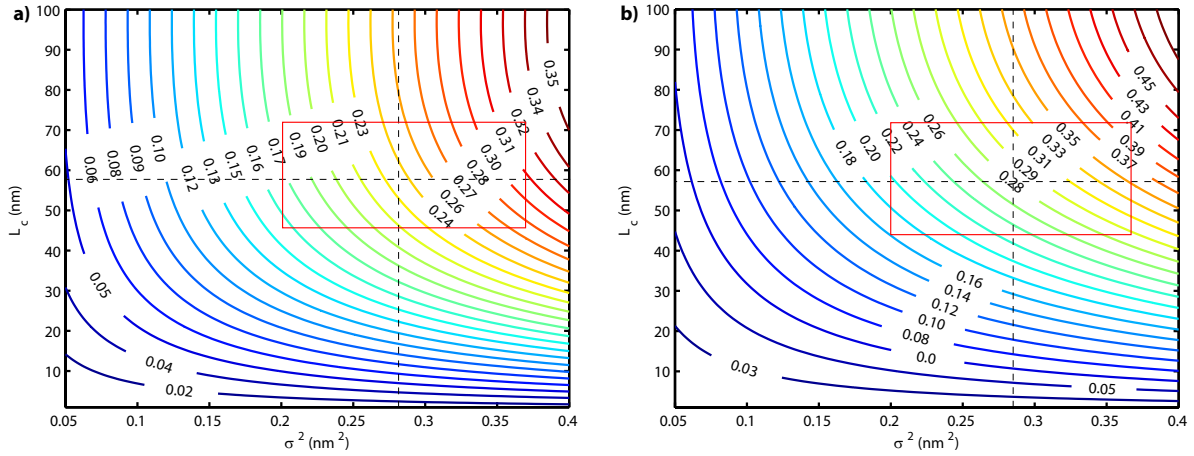


FIGURE 4.2 – Estimation des pertes de propagations en fonctions des paramètres de la rugosité. La fonction d'autocorrélation est assimilée à une fonction a) exponentielle, b) gaussienne.

l'expression des pertes (équation 4.4 ou 4.5 respectivement). Sur la figure 4.2 nous avons donc comparé les résultats obtenus selon que l'on a utilisé un modèle exponentiel (a) ou gaussien (b). Nous avons estimé en section 3.4.1 que l'erreur sur σ et L_c était respectivement $\Delta\sigma=0.08$ nm et $\Delta L_c=14$ nm. Nous avons représenté ces erreurs sur la figure 4.2 et l'on constate qu'elles entraînent une incertitude non négligeable sur la valeur des pertes de propagation. Si l'on ajuste $R(u)$ avec une fonction exponentielle ou gaussienne on obtient que les pertes induites par la rugosité des interfaces GaAs/AlOx sont respectivement de $\approx 0.24 \pm 0.08$ cm⁻¹ ou $\approx 0.28 \pm 0.12$ cm⁻¹. On constate que les bornes inférieures ne représentent qu'environ 40 % de la valeur expérimentale, ce qui restent néanmoins en accord qualitatif. Si l'on se tourne vers les bornes supérieures, on constate cette fois que l'on s'approche quasiment de la valeur de référence. En raison de la large variation des pertes avec σ^2 et L_c , on ne peut se défaire d'une incertitude importante sur les résultats obtenus *via* nos calculs qu'en réduisant l'incertitude sur les paramètres de la rugosité. Dans l'avenir, ceci pourrait être fait en tentant d'obtenir des lames minces TEM moins épaisses que celles utilisées dans notre étude présentée en section 3.4.1.

Nous avons ensuite mesuré l'impact sur l'estimation des pertes, d'une mauvaise estimation des paramètres liés aux couches d'AlOx, à savoir variation de leur épaisseur

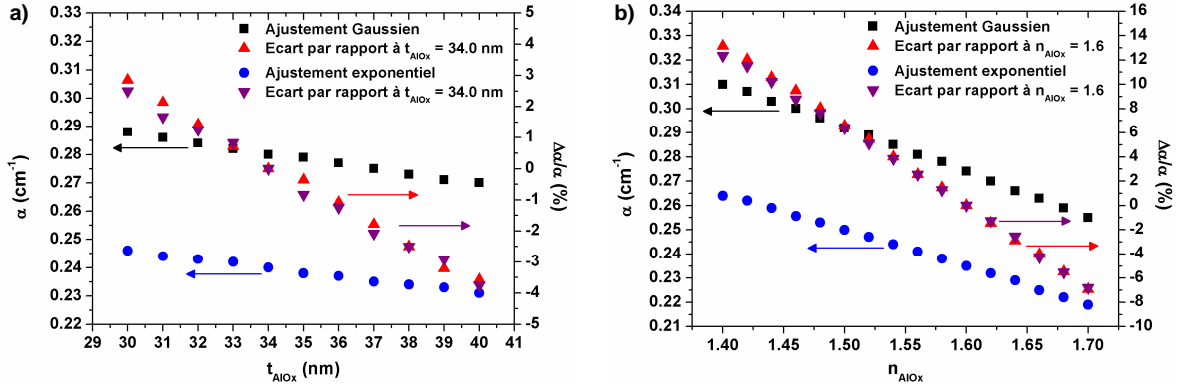


FIGURE 4.3 – Estimations des pertes de propagation simulées en fonction : a) de l'épaisseur des couches d'AlOx (différence en % par rapport à la valeur standard $t_{\text{AlOx}} = 34.0$ nm), b) de l'indice de réfraction des couches d'AlOx (différence en % par rapport à la valeur standard $n_{\text{AlOx}} = 1.6$).

ou mauvaise estimation de leur indice de réfraction. Ces résultats sont présentés sur la figure 4.3. Nous avons à chaque fois calculé les pertes de propagation en utilisant un modèle exponentiel (carrés et triangles) ou gaussien (ronds et triangles inversés). Tout d'abord concernant une erreur sur l'épaisseur des couches d'AlOx (figure 4.3a), on constate que la valeur estimée des pertes de propagation (sur l'axe des ordonnées à gauche) décroît faiblement avec l'augmentation de l'épaisseur des couches. L'impact sur l'incertitude sur les pertes est limité à ± 3 % (axe des ordonnées à droite). De la même façon, l'incertitude sur la valeur exacte de l'indice de réfraction de l'AlOx (figure 4.3b) n'entraîne qu'une incertitude de l'ordre de ± 10 % (axe de droite) sur la valeur des pertes (axe de gauche). Il n'est donc pas nécessaire de connaître ces paramètres avec une très grande précision puisque l'incertitude qu'ils entraînent est relativement faible.

Nous avons aussi étudié la variation des pertes avec la température des guides d'ondes (figure 4.4). N'ayant pas d'information sur la variation de l'indice de réfraction de l'AlOx avec la température, nous avons adopté une valeur constante $n=1.6$. En revanche, l'indice de réfraction du GaAs augmente avec la température [122]. Toutefois cette augmentation est très limitée ce qui explique les variations des pertes de seulement 1 ou 2 %.

Finalement nous nous sommes intéressés à la variation des pertes de propagation avec la longueur d'onde (figure 4.5). Nous trouvons des pertes de l'ordre de 0.5 cm^{-1}

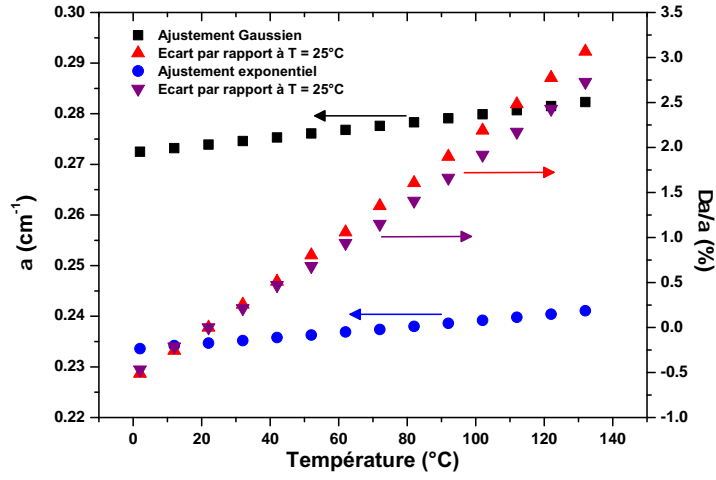


FIGURE 4.4 – Estimations des pertes de propagation simulées en fonction de la température du guide d'ondes et différence en % par rapport à la valeur référence $T=25^{\circ}\text{C}$).

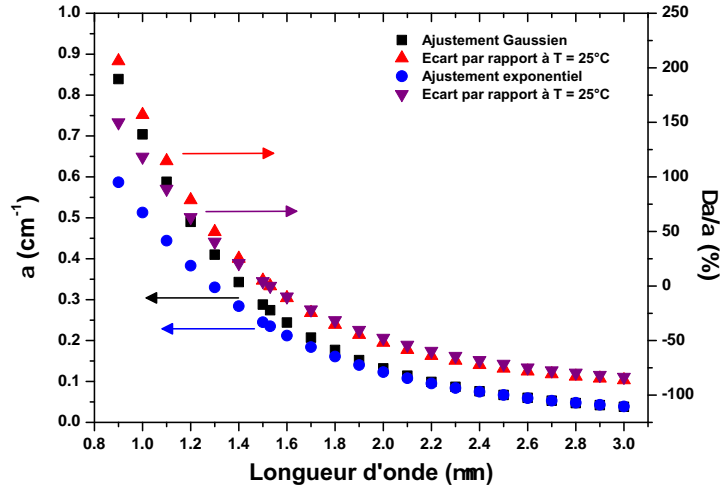


FIGURE 4.5 – Estimations des pertes de propagation simulées de modes TE en fonction de la longueur d'onde et différence en % par rapport à la valeur référence $\lambda = 1.53 \mu\text{m}$).

autour de λ_p bien qu'elles soient seulement de l'ordre de 0.1 cm^{-1} au-delà de $2 \mu\text{m}$. Ceci peut avoir une répercussion importante dans la recherche de l'oscillation paramétrique loin de la dégénérescence et l'on perçoit l'effort qui devra être fait pour obtenir

des miroirs de réflectivité suffisante pour compenser les pertes aux longueurs d'onde proche de $1\ \mu\text{m}$.

Nous avons donc montré que la rugosité générée par l'étape d'oxydation est responsable de pertes de propagation, en bon accord avec les valeurs expérimentales. L'incertitude sur des paramètres tels que l'épaisseur et l'indice de réfraction des couches d'AlOx n'a que peu d'influence sur ces estimations des pertes. En revanche, nous avons souligné que l'incertitude sur la valeur de la longueur de corrélation et l'amplitude de la rugosité est responsable d'une erreur non négligeable sur les estimations. L'erreur totale mène à des valeurs de pertes allant de 40 à 100 % de la valeur attendue, ce qui reste néanmoins en accord qualitatif avec les mesures.

4.2 Mesure d'amplification paramétrique

En 2007, l'efficacité de conversion normalisée a été estimée dans nos guides d'ondes GaAs/AlOx à biréfringence de forme. Elle a été évaluée à $\eta_{norm}=1500\ \% \text{ W}^{-1}\text{cm}^{-2}$ par des mesures de fluorescence paramétrique spontanée (SPDC²⁹) et de génération de second harmonique [9]. Cette valeur constitue un record pour des guides en GaAs. Ce résultat nous a encouragé à faire une expérience d'amplification paramétrique. Cette expérience a été réalisée par fluorescence paramétrique stimulée (SDC³⁰) à la dégénérescence ($\lambda_p=1.03\ \mu\text{m}$). Cette nouvelle partie lui est consacrée. Nous y décrivons l'expérience puis exposons les résultats obtenus au début de cette thèse en collaboration avec Marco Ravaro qui terminait sa propre thèse au sein de l'équipe *Dispositifs Optiques Non-linéaires* du laboratoire *Matériaux et Phénomènes Quantiques*. On explique ici l'essentiel de l'expérience et le lecteur désireux d'approfondir le sujet pourra se référer au chapitre 3.3 de la thèse de Marco Ravaro [2].

4.2.1 Montage expérimental

Grâce au montage expérimental représenté sur la figure 4.6, nous avons réalisé deux expériences : tout d'abord de la SPDC puis de la SDC (schématisées sur la figure 4.7), toutes les deux à proximité de la dégénérescence. Dans les deux expériences, la pompe

29. pour l'acronyme anglais de spontaneous parametric down conversion.

30. pour l'acronyme anglais de seeded down conversion.

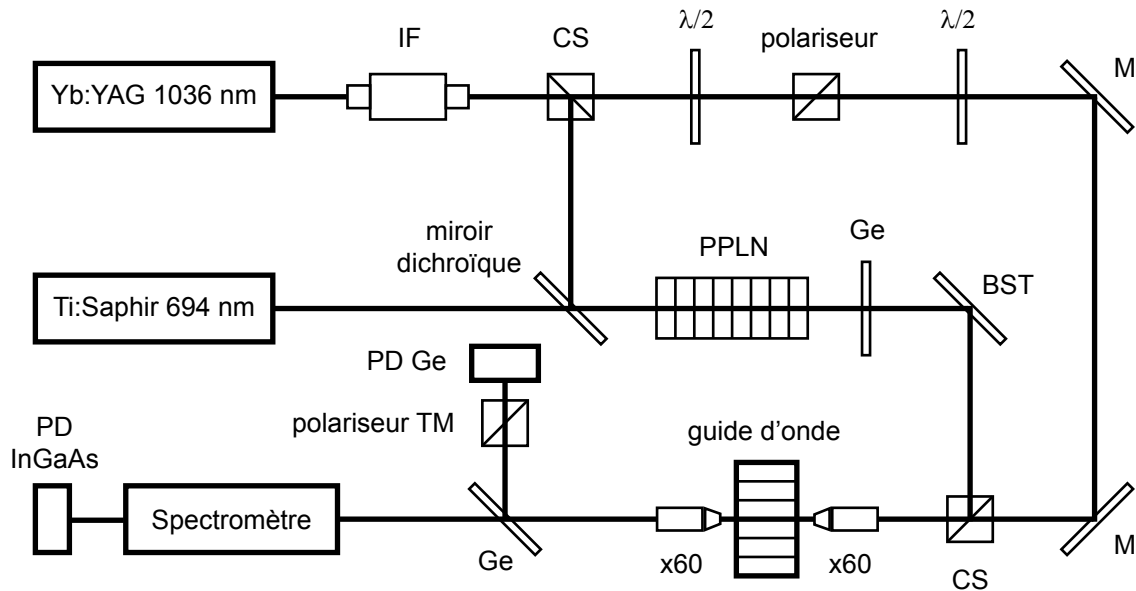


FIGURE 4.6 – Représentation schématique du montage expérimental de la mesure d'amplification paramétrique. IF : Isolateur de Faraday ; CS : cube séparateur ; $\lambda/2$: lame demi-onde ; M : miroir ; BST : beam steerer ; and PD : photodétecteur.

est fournie par un laser YAG dopé ytterbium (Yb :YAG), monomode et continu, émettant à $1.03 \mu\text{m}$. Son faisceau passe à travers un isolateur de Faraday, une première lame demi-onde, un polariseur TM et une seconde lame demi-onde.

- La première lame demi-onde et le polariseur TM permettent de régler la puissance du laser sans modifier son courant de pompage. De cette façon le laser oscille de manière stable sur un seul mode longitudinal.
- La seconde lame demi-onde est indispensable pour l'expérience de SDC, dans laquelle nous avons besoin de varier la puissance de la pompe TM (seule la composante TM est utile dans le processus de conversion non-linéaire). En effet, en tournant cette lame nous faisons varier la puissance de la composante TM tout en maintenant la puissance totale constante. De cette façon, la puissance couplée dans le guide reste la même, on évite des variations néfastes de la température du guide. Les indices effectifs des modes interagissant ne changent pas et les condi-

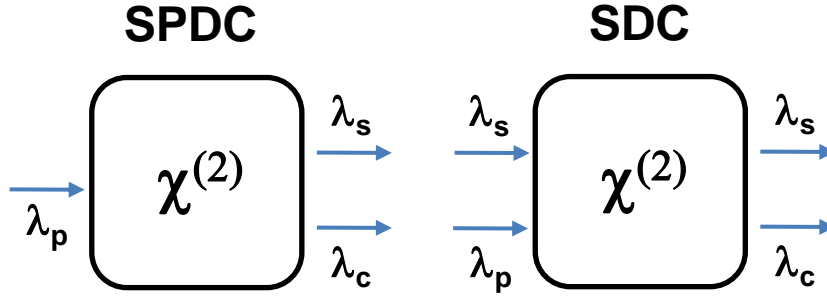


FIGURE 4.7 – Principe de fonctionnement de la SPDC et de la SDC : la SPDC repose sur l'émission spontanée d'une paire de photons signal et complémentaire alors qu'en SDC cette émission est aidée par l'injection d'un faisceau à la longueur d'onde du signal.

tions d'accord de phase ne sont pas modifiées.

Dans l'expérience de SDC, le signal est obtenu en mélangeant, dans un cristal de niobate de lithium périodiquement retourné (PPLN³¹), une partie du faisceau émis par le laser Yb :YAG et un faisceau continu, de largeur spectrale 1.5 GHz, issu d'un laser Ti :Sapphire, émettant autour de $0.7 \mu\text{m}$. À la sortie du PPLN, le signal de différence de fréquence, polarisé TM, de longueur d'onde $\lambda_s = 2.06 \mu\text{m}$, passe à travers un filtre de Ge qui absorbe les faisceaux incidents. La polarisation du signal est ensuite tournée de 90° au moyen d'un *beam-steerer*³². Le signal et la pompe sont ensuite alignés de façon colinéaire, et couplés dans le (et hors du) guide d'ondes à l'aide d'un objectif de microscope de grandissement $\times 60$ et d'ouverture numérique $N.A. = 0.85$. À la sortie du guide d'ondes :

1. La pompe TM est bloquée à l'aide d'un filtre de Ge qui la réfléchit partiellement sur une photodiode Ge calibrée.
2. Le signal et le complémentaire, tout deux polarisés TE, sont envoyés dans un spectromètre. Celui-ci est soit utilisé pour faire des acquisitions de la SPDC, soit utilisé pour séparer les puissances du signal et du complémentaire dans les

31. Acronyme anglais de Periodically Poled Lithium Niobate.

32. Ce dispositif se compose de deux miroirs placés l'un au-dessus de l'autre de telle sorte que la direction du faisceau tourne de 90° .

expériences de SDC.

4.2.2 Résultats

Tout d'abord nous avons caractérisé la SPDC dont la courbe expérimentale d'accord de phase est représentée sur la figure 4.8. En bon accord avec nos calculs, un léger changement de la longueur d'onde de pompe λ_p sur 24 nm permet d'obtenir un signal et un complémentaire dans une bande de 1.4 μm , avec une dégénérescence à $\lambda_p=1.035 \mu\text{m}$.

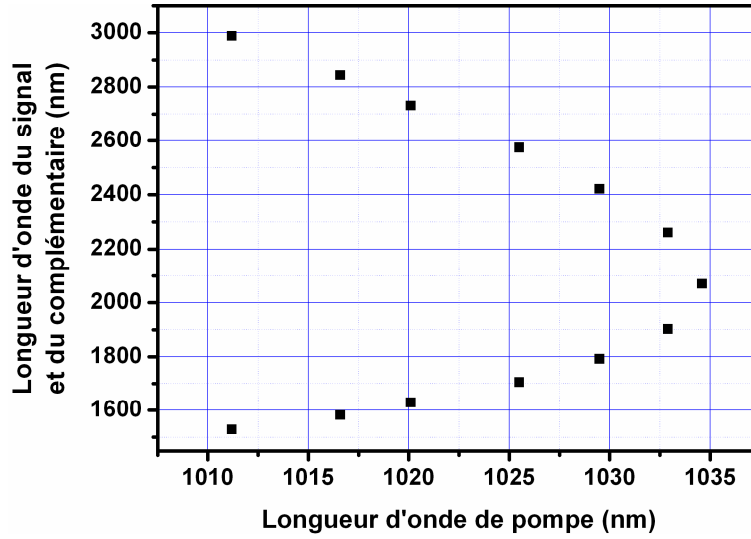


FIGURE 4.8 – Courbe expérimentale d'accord de phase.

Ensuite nous avons injecté la pompe dans le guide d'ondes avec les caractéristiques suivantes : une longueur d'onde réglée à $\lambda_p=1.036 \mu\text{m}$ et une puissance externe de $P_p=100 \text{ mW}$. Le spectre de SPDC résultant, exposé sur la figure 4.9 en ligne pointillée, a été acquis après avoir réglé la température de l'échantillon de façon à maximiser le gain paramétrique à la dégénérescence.

Finalement, la longueur d'onde du Ti :Sapphire et la température du PPLN ont été réglées de façon à produire un signal précurseur polarisé TE, de longueur d'onde $\lambda_s=2.046 \mu\text{m}$ et de puissance externe $P_s=500 \mu\text{W}$. Ainsi le précurseur est bien dans la bande de gain paramétrique, mais légèrement décalé par rapport à la dégénérescence pour nous permettre de résoudre spectralement le signal et le complémentaire en sortie

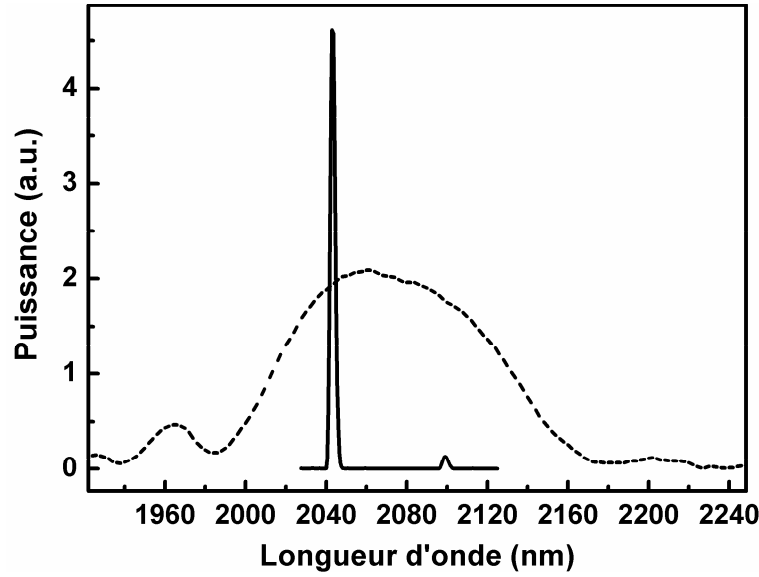


FIGURE 4.9 – Spectres expérimentaux de SPDC (ligne pointillée) et de SDC (ligne continue).

du guide d'ondes GaAs/AlOx.

En injectant le précurseur et la pompe dans le guide d'ondes nous avons obtenu le spectre reporté sur la figure 4.9 en ligne continue. Ce spectre montre le signal amplifié et le complémentaire de façon très clair. Celui-ci, en accord avec la relation de conservation de l'énergie $\frac{1}{\lambda_i} = \frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}$, est émis à $\lambda_i = 2.099 \mu\text{m}$. La largeur spectrale des deux pics est dictée par la résolution du spectromètre.

À l'accord de phase, le gain paramétrique est :

$$G \equiv \frac{P_s(L)}{P_s(0)} - 1 = \sinh^2(gL)$$

avec L la longueur du guide et g le coefficient de gain paramétrique. En régime de faible gain, $gL < 1$ et on peut approcher le gain paramétrique par $G \simeq (gL)^2$. Alors, celui-ci augmente linéairement avec la puissance de pompe. Près de la dégénérescence ($\lambda_s \approx \lambda_i$), nous pouvons faire les deux hypothèses suivantes : en raison d'un faible gain, $P_s(L) \approx P_s(0)$, et $P_s(L) = P_s(0) + P_c(L)$. On obtient alors une expression simplifiée du gain paramétrique :

$$G \simeq \frac{P_c(L)}{P_s(0)}$$

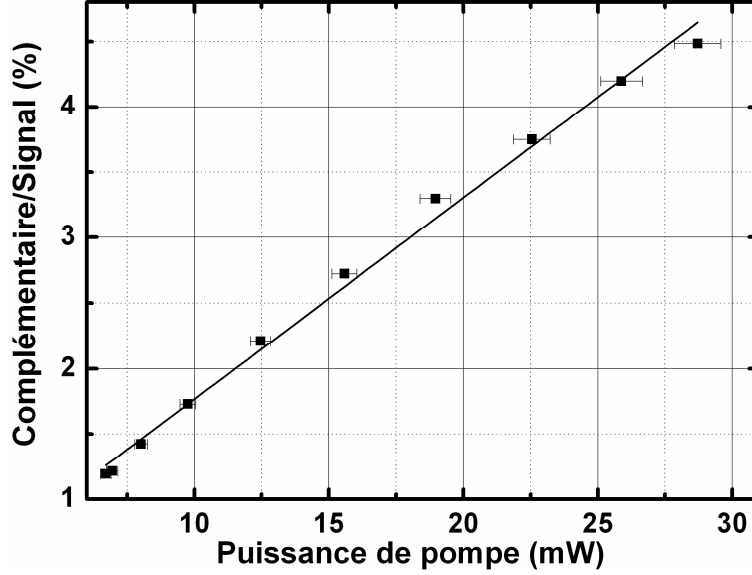


FIGURE 4.10 – Amplification paramétrique en fonction de la puissance de pompe couplée.

On peut ainsi évaluer g et G en mesurant le rapport complémentaire à signal en sortie du guide.

La figure 4.10 montre le rapport complémentaire à signal en fonction de la puissance P_p couplée dans le guide d'ondes. Comme prévu ce rapport est parfaitement ajusté par une droite. Sa pente divisée par la longueur du guide donne le coefficient de gain paramétrique normalisé :

$$\frac{g}{\sqrt{P_p}} = 4.1 \pm 0.1 \text{ cm}^{-1} \text{W}^{-1/2}$$

Dans la mesure où la puissance du signal et du complémentaire a été acquise avec le même détecteur, le ratio $P_c(L)/P_s(L)$ ne dépend que de la résolution de ce dernier ; les incertitudes de calibration ne l'affecte pas. Ceci explique que les barres d'erreur verticales sont extrêmement petites et n'apparaissent pas sur la figure 4.10. En revanche, la puissance de pompe a été mesurée avec une incertitude de 3 % liée à la photodiode Ge.

L'amplification paramétrique maximale, obtenue pour $P_p \approx 30$ mW, est $G = 4.5$ %, ce qui correspond à une efficacité $\eta = 150$ %/W. Cette valeur peut être comparée à

$\eta = 18 \text{ \%}/W$ obtenue par Bortz dans un guide PPLN [123]. Nous soulignons aussi l'importante amélioration par rapport aux premières expériences dans des guides d'ondes GaAs/AlOx [34], pour lesquelles il n'avait pas été possible d'estimer l'amplification paramétrique, principalement en raison de très grandes pertes de propagation.

Étant données les valeurs de la longueur des guides d'ondes, de la puissance de pompe couplée et du gain paramétrique, le seuil d'oscillation pour un OPO doublement résonnant devrait être atteint pour une réflectivité des facettes de 95 % [124]. Cela, à condition que les pertes de propagation de la pompe et du signal ne dépassent pas 0.5 cm^{-1} . De plus, si l'on augmente la puissance de pompe jusqu'à $P_p = 60 \text{ mW}$, correspondant à la puissance maximale que l'on peut coupler dans ces guides [9], le gain paramétrique augmente jusqu'à environ 8 %, et la réflectivité nécessaire tombe à 88 %. Dans les sections 4.3 et 4.4, nous nous focaliserons sur l'obtention des conditions optimales pour atteindre le seuil d'oscillation, à travers la minimisation des pertes de propagation et l'augmentation de la réflectivité des facettes des guides.

4.3 Recherche des paramètres d'oxydation optimale

Après avoir quantifié les pertes de propagation dues à l'étape d'oxydation et confirmé combien la maîtrise de cette étape était cruciale, nous avons entrepris de rechercher les paramètres d'oxydation minimisant les pertes.

Nous avons vu en section 2.2.2 que la cinétique d'oxydation³³ dépend d'un grand nombre de paramètres. Si l'on met de côté les paramètres intrinsèques à l'échantillon (épaisseur et teneur en aluminium des couches à oxyder et des couches voisines) il reste quatre degrés de liberté pour contrôler l'oxydation : température et débit de la vapeur d'eau, choix du gaz porteur et température du four. L'influence de chacun de ces paramètres peut se mesurer en termes de pertes de propagation des guides d'ondes. Par ailleurs, pour un ensemble de paramètres fixé, il est intéressant d'oxyder des échantillons pendant des durées variables.

Dans cette section nous rappelons le principe de caractérisation des pertes de propagation utilisée pour cette étude, la démarche de recherche des paramètres d'oxydation optimum et les résultats obtenus.

³³. Ici, comme dans toute cette partie, on entend par "oxydation", l'oxydation latérale humide décrite en section 2.2.2.

4.3.1 Mesure des pertes de propagation en guide d'ondes

Parmi les méthodes de caractérisation des pertes dans les guides d'ondes on retrouve : la mesure de la lumière diffusée le long du guide [125], les mesures de transmission en fonction de la longueur des guides [126] et la mesure du contraste des franges Fabry-Pérot [127]. Cette dernière est particulièrement intéressante, car il s'agit d'une méthode non destructive, indépendante des conditions de couplage de la lumière à l'entrée du guide, et adaptée à la mesure de pertes faibles. Par ailleurs sa mise en place expérimentale est relativement simple. Pour tous les avantages dont elle dispose, nous avons utilisé la méthode des franges Fabry-Pérot pour caractériser les pertes de nos guides d'ondes.

La technique des franges Fabry-Pérot

Nous rappelons ici le principe de la mesure de pertes de propagation par la méthode des franges de Fabry-Pérot [127]. Dans les guides d'ondes, une partie de la lumière propagée est réfléchi aux interfaces guide/air en raison de la différence d'indice des deux milieux. La partie réfléchi est susceptible d'interférer de façon constructive ou destructive avec l'onde incidente et le guide se comporte comme une cavité Fabry-Pérot. Dans le cas d'une onde monochromatique dans un guide monomode, le caractère constructif ou destructif de l'interférence dépend du déphasage ϕ après un aller-retour :

$$\phi = 2k_0 n_{eff} L + \phi_0$$

où k_0 est le vecteur d'onde dans le vide, n_{eff} est l'indice effectif du mode dans le guide d'ondes de longueur L et ϕ_0 est le déphasage associé aux réflexions sur les deux facettes. La transmission du mode guidé est alors donnée par la fonction d'Airy :

$$T_{FP} = \frac{\eta T^2 \exp(-\alpha L)}{(1 - \tilde{R})^2 + 4\tilde{R} \sin^2(\phi/2)}$$

où l'on retrouve au numérateur les termes liés aux pertes : η est le coefficient de couplage du mode dans le guide, T est le coefficient de transmission des facettes et α est le coefficient de pertes de propagation par unité de longueur. Au dénominateur on retrouve les termes caractérisant l'interférence : le déphasage ϕ et le coefficient combiné

pertes-réflexion \tilde{R} défini par

$$\tilde{R} = R \exp(-\alpha L)$$

Connaissant le coefficient de réflexion R ³⁴ et la longueur du guide, il est possible de déduire le coefficient de pertes si l'on est en mesure de déterminer la valeur de \tilde{R} . La technique des franges de Fabry-Pérot consiste à mesurer le contraste $K = (T_{max} - T_{min}) / (T_{max} + T_{min})$ entre le maximum et le minimum des franges de transmission observée en sortie du guide, et à le relier au coefficient combiné pertes-réflexion à travers l'expression

$$\tilde{R} = \frac{1}{K} \left(1 - \sqrt{1 - K^2} \right)$$

On obtient finalement l'expression finale du coefficient de pertes dans laquelle tous les paramètres sont déterminés :

$$\alpha = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{R}{\tilde{R}} \right) \quad (4.6)$$

Pour observer les franges Fabry-Pérot on varie continûment la longueur d'onde λ du mode couplé dans le guide. On modifie alors le déphasage ϕ en modifiant la valeur du terme $k_0 n_{eff}$.

Mise en œuvre expérimentale

Le montage expérimental permettant la mesure des pertes de propagation avec la méthode des franges Fabry-Pérot est schématisé sur la figure 4.11. Les pertes sont mesurées autour de $1.5 \mu\text{m}$ pour un mode polarisé TE. Pour cela nous disposons d'un laser semiconducteur à cavité externe *Tunics MC 100*, accordable sans saut de mode entre 1460 et 1600 nm. Sa largeur de bande d'émission est inférieure à 1 MHz, soit moins de 10 fm, et son déplacement en longueur d'onde peut atteindre de l'ordre de 1 pm. Autour de $1.5 \mu\text{m}$, et pour des guides de 3 mm, l'interfrange est de l'ordre de 100 pm. Nous pouvons donc faire des acquisitions extrêmement fines des franges de transmission.

Le faisceau est amené par une fibre et sa polarisation en sortie est réglée à l'aide

34. Dans le cas d'un guide d'ondes monomode on obtient une très bonne valeur approchée de R en utilisant la formule de Fresnel : $R = \left(\frac{n_{eff}-1}{n_{eff}+1} \right)^2$.

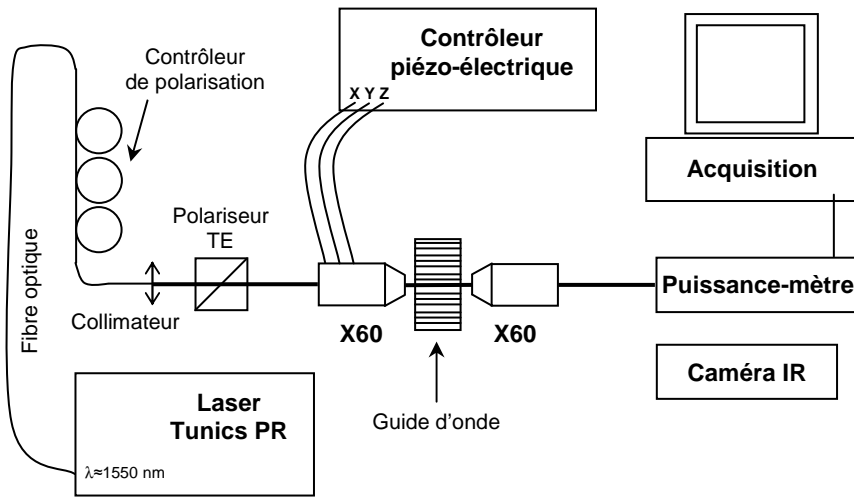


FIGURE 4.11 – Schéma du montage expérimental de la mesure de pertes de propagation.

d'un contrôleur de polarisation. Le faisceau, polarisé TE, est ensuite colimaté et couplé dans un guide d'ondes à l'aide d'un objectif de microscope de grandissement $\times 60$ et d'ouverture numérique $NA=0.85$. Un objectif similaire permet de coupler le faisceau hors du guide.

Le couplage du faisceau dans le mode fondamental est réalisé à l'aide d'une caméra IR vidicon positionnée derrière l'objectif de sortie. Il est ensuite optimisé au moyen d'un puissance-mètre positionné à la place de la caméra, et en déplaçant l'objectif d'entrée à l'aide d'une platine de micro-positionnement piezo-électrique.

Limites de cette technique

Il est assez facile de fabriquer un guide d'ondes monomode dans la direction de croissance en choisissant un *design* approprié où le cœur est suffisamment étroit. En revanche, dans la direction transverse on évite généralement de graver des guides trop étroits car les pertes tendent à augmenter [113]. Ainsi nos guides font typiquement $3\text{--}4\text{ }\mu\text{m}$ de large et acceptent plusieurs modes transverses. Or, dans le cas des guides multimodes, la méthode des franges Fabry-Pérot est plus difficile à mettre en œuvre [128]. En effet, l'incertitude sur la mesure de pertes, obtenue en dérivant l'expression 4.6, est

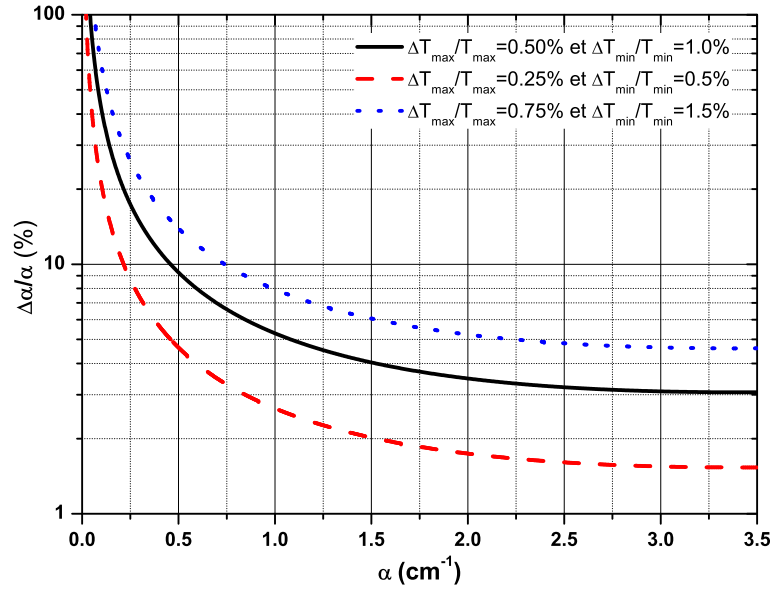


FIGURE 4.12 – Incertitude de la valeur des pertes de propagation en fonction de l'erreur sur le contraste des franges Fabry-Pérot.

donnée par l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta\alpha}{\alpha} &= \frac{1}{\alpha L} \left(\frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta \tilde{R}}{\tilde{R}} \right) \\ &= \frac{1}{\alpha L} \left[\frac{\Delta R}{R} + \frac{\sqrt{T_{max}T_{min}}}{T_{max} - T_{min}} \left(\frac{\Delta T_{max}}{T_{max}} + \frac{\Delta T_{min}}{T_{min}} \right) \right] \end{aligned}$$

On remarque que cette expression dépend d'une part de l'incertitude sur l'estimation de la réflectivité des facettes, et d'autre part de l'erreur sur la mesure de l'intensité des franges Fabry-Pérot.

Le premier type d'incertitude est dû au fait que pour des guides d'ondes de grande ouverture numérique, l'expression de Fresnel n'est plus valide. Toutefois, il est possible d'obtenir la valeur exacte de la réflectivité à l'aide de calculs FDTD à 3 dimensions.

Le second type d'incertitude est accentué dans le cas des guides multimodes. La transmission totale correspond à la somme des fonctions d'Airy de chacun des modes guidés et une mauvaise estimation des valeurs T_{max} et T_{min} entraîne automatiquement une grande incertitude sur la valeur des pertes. Cette incertitude peut être minimisée en recherchant l'intervalle spectral sur lequel les fonctions d'Airy de chacun des modes se recouvrent. On doit aussi trouver les conditions permettant de coupler le maximum

de puissance dans le mode fondamental, qui est celui dont on cherche vraiment les pertes de propagation. Comme le montre la figure 4.12, où l'erreur sur le maximum et minimum des franges (ΔT_{max} et ΔT_{min} respectivement) varie autour de 1 %, cette incertitude atteint environ 10 % pour des pertes de 0.5 cm^{-1} et peut atteindre aisément plusieurs dizaines de pourcents si les pertes sont plus faibles.

4.3.2 Modification des conditions d'oxydation

Parmi les paramètres influençant la cinétique d'oxydation nous nous sommes focalisés sur la température du four. En effet, un retour sur la figure 2.8b nous indique que quel que soit le gaz porteur utilisé (N_2 , H_2 , H_2/N_2), la cinétique d'oxydation demeure identique. Nous avons donc calibré notre four d'oxydation pour différentes températures. Les résultats, présentés sur la figure 4.13, montrent que l'avancement du front d'oxydation se fait plus ou moins de façon linéaire. On note toutefois que pour des températures d'oxydation inférieures à 420°C la cinétique est très lente et assez instable. Nous avons décidé de réaliser notre étude comparative pour des températures supérieures à 410°C . L'intervalle de durée d'oxydation a été choisi de façon à ce que les fronts, se propageant à partir de chacun des flancs des guides, se rejoignent afin que les couches d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ soient complètement oxydées. Nous avons aussi fixé un temps maximum d'oxydation correspondant à environ deux fois le temps optimal, c'est-à-dire le temps nécessaire pour que les fronts d'oxydation progressent de $2.5 \mu\text{m}$, la moitié de la largeur de la couche d' AlOx la plus large (la gravure chimique est en effet responsable d'une différence de largeur entre le haut et le bas du cœur guidant ; si le guide fait $3 \mu\text{m}$ de large en haut, il en fait 5 en bas). En effet, intuitivement on imagine bien que les couches peuvent souffrir d'une oxydation prolongée. Nous avons d'ailleurs vu en section 2.2.1 que c'est la raison qui avait entraîné une modification de la géométrie des guides d'ondes.

On présente sur la figure 4.14, les résultats de nos mesures de pertes de propagation en fonction des conditions d'oxydation. Nous avons oxydé des échantillons à 410 , 420 et 430°C . Pour chacun des tests on constate que pour des durées d'oxydation trop courtes les pertes sont assez élevées. En effet, si les fronts n'ont pas le temps de se rejoindre, le cœur est constitué d'une partie oxydée sur les bords et d'une partie non oxydée au milieu. L'indice effectif des différentes régions est différent et les modes se propageant

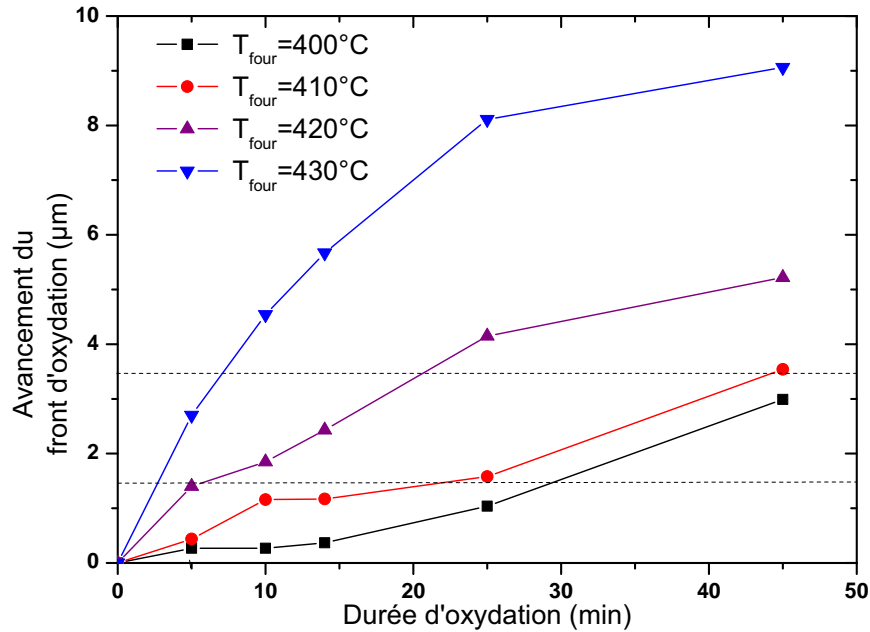


FIGURE 4.13 – Courbes de calibration du four d'oxydation.

n'ont plus la même distribution et sont susceptibles d'être diffusés aux interfaces parties oxydées/partie non oxydée. Un optimum est atteint pour des durées permettant aux fronts de parcourir environ $2.5 \mu\text{m}$, soit $5.0 \mu\text{m}$ en tout. Cette distance correspond à la largeur de la couche d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ la plus basse. Enfin une fois passée cette durée optimale, les pertes de propagation augmentent de façon importante. La suroxydation des guides d'ondes modifie probablement encore plus les interfaces GaAs/AlOx .

En normalisant les pertes par rapport aux pertes mesurées dans le cas de l'oxydation standard (14 minutes à 420°C) on note qu'à 410°C les pertes sont toujours supérieures aux pertes "standard". En revanche, une oxydation à 430°C , limitant la durée de cette étape, permet de réduire de 20 % les pertes de propagation. Toutefois, on remarque que la cinétique étant beaucoup plus rapide qu'à 420°C , la limite d'oxydation optimale est vite dépassée. Un retour sur la figure 2.8a montre que l'augmentation de la température de la vapeur et de son débit ont une conséquence similaire sur la cinétique d'oxydation. Pour cette raison il ne nous a pas semblé nécessaire de modifier ces paramètres, ce qui sans doute aurait donné des résultats similaires à ceux obtenus à 430°C .

Compte tenu du mauvais contrôle de l'oxydation en dessous de 420°C et du niveau des pertes à partir de 430°C , les conditions d'oxydation que nous utilisons de manière

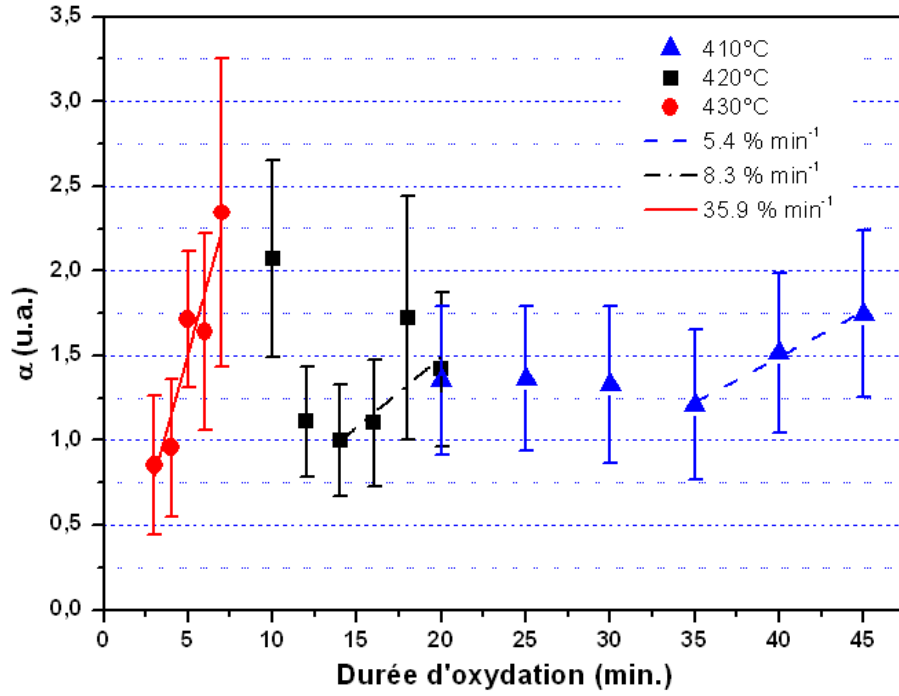


FIGURE 4.14 – Evolution des pertes de propagation en fonction des conditions d'oxydation pour un mode TE de longueur d'onde $\lambda = 1.55 \mu\text{m}$. Toutes les valeurs sont normalisées par rapport aux pertes résultant d'une oxydation standard : 14 minutes à 420°C .

standard nous semblent être le meilleur compromis entre contrôle de l'oxydation et niveau de pertes final.

4.4 Miroirs haute réflectivité pour l'oscillation paramétrique

Nous avons évoqué ou présenté jusqu'ici les démonstrations d'expériences réalisées dans nos guides d'ondes GaAs/AlOx : génération de fréquence différence [35], génération de seconde harmonique [9, 34, 36], fluorescence paramétrique [8, 9] et amplification paramétrique (cf. section 4.2 et [37]). Au cours de cette thèse nous avons cherché à comprendre l'origine des pertes, dernier frein à lever pour obtenir la première oscillation paramétrique optique en guide d'ondes GaAs/AlOx. En particulier nous avons identifié

les effets de l'oxydation sur la structure multicouche (cf. section 3.4.1) et avons démontré sa responsabilité dans la génération de pertes de propagation (cf. sections 3.4.2 et 4.1).

La réalisation d'une cavité OPO passe par la fabrication de miroirs à haute réflectivité au niveau des facettes des guides d'ondes. Etant donné qu'il est peu envisageable de réduire les pertes de propagation en dessous de 0.5 cm^{-1} (cf. section 4.3), la réalisation et la fabrication de ces miroirs est donc l'élément clé pour obtenir une source intégrée largement accordable en longueur d'onde.

Nous avons vu en section 1.1.5 que l'on pouvait envisager une cavité résonnante uniquement pour le signal (SROPO) ou résonnante pour le signal et le complémentaire (DROPO). Dans ces deux configurations la puissance de pompe au seuil est donnée respectivement par les expressions [16] :

$$P_{p,th} = \frac{2 [1 - R_s \exp(-\alpha_s L)]}{L^2 \eta_{norm}} \quad (4.7)$$

et

$$P_{p,th} = \frac{[1 - R_s \exp(-\alpha_s L)] [1 - R_c \exp(-\alpha_c L)]}{L^2 \eta_{norm}} \quad (4.8)$$

où α_s et α_c sont les coefficients de pertes du signal et du complémentaire respectivement, et R_s et R_c sont les coefficients de réflectivité des facettes pour le signal et le complémentaire respectivement.

En tenant compte du coefficient de gain paramétrique normalisé de nos guides d'ondes, $\sqrt{\eta_{norm}} = 4.1 \text{ cm}^{-1} \text{W}^{-1/2}$ (cf. section 4.2), et des pertes typiques, $\alpha = 0.5 \text{ cm}^{-1}$, on trouve que la puissance de pompe au seuil d'oscillation pour un SROPO et un DROPO vaut respectivement $P_{p,th} = 313 \text{ mW}$ et $P_{p,th} \approx 35 \text{ mW}$, pour des guides de 3 mm de long avec des facettes dont la réflectivité est de 90% . Dans la mesure où la puissance maximale que l'on peut coupler dans les guides d'ondes sans les endommager est de l'ordre de $80\text{-}90 \text{ mW}$, seule la configuration DROPO peut être envisagée. Dans le cas d'un DROPO symétrique (réflectivité des deux facettes identiques) Bava *et al.* ont montré que la puissance de pompe au seuil peut se réécrire [124]

$$P_{p,th} = \frac{1}{\eta_{norm}} \left[\frac{\alpha_p/2}{1 - \exp(-\alpha_p L/2)} \ln \left(Q + \sqrt{Q^2 - 1} \right) \right]^2 \quad (4.9)$$

avec

$$Q = \frac{1 + R_s \exp(-\alpha_s L) R_c \exp(-\alpha_c L)}{R_s \exp(-\alpha_s L) + R_c \exp(-\alpha_c L)} \quad (4.10)$$

où α_p est le coefficient de pertes de la pompe. Autour de la dégénérescence on peut considérer que $R_s = R_c = R$, et en admettant que $\alpha_s = \alpha_c = \alpha$ l'équation 4.9 devient

$$P_{p,th} = \frac{1}{\eta_{norm}} \left[\frac{-\alpha_p \ln[R \exp(-\alpha L)]}{2[1 - \exp(-\alpha_p L/2)]} \right]^2 \quad (4.11)$$

On peut alors représenter la variation de la valeur de la puissance de pompe au seuil d'oscillation en fonction de la longueur des guides, de la réflectivité des facettes ou des pertes de propagation. Sur la figure 4.15a on constate que le seuil d'oscillation d'un DROPO (courbe α) décroît avec la longueur du guide pour atteindre un minimum puis augmente légèrement ensuite. Dans le cas où la réflectivité R à la longueur d'onde du signal et du complémentaire, $R_{s,c}$, est de 90 % ce minimum est situé vers 1.2 cm. Néanmoins, pour des guides de 3 mm³⁵ le seuil d'oscillation est de l'ordre de 50 mW et se situe donc sous la limite de dommage d'environ 70 mW représentée par la ligne horizontale continue verte. En considérant un guide de 3 mm, on observe sur la figure 4.15b que pour des miroirs réfléchissant plus 87 % du signal et du complémentaire, le seuil d'oscillation se situe sous la puissance maximale que l'on peut coupler. Ce seuil diminue évidemment à mesure que les miroirs réfléchissent mieux les faisceaux.

Toutefois, les pertes par diffusion surfacique dépendent de la longueur d'onde du faisceau propagé. De ce fait, proche de la dégénérescence, les pertes liées à la pompe sont plus importantes que celles liées au signal et au complémentaire. En remplaçant les coefficients de pertes α_p , α_s et α_c par ceux estimés en sections 4.1.2 et 4.1.3 on constate que le seuil d'oscillation augmente légèrement, comme l'illustre la courbe β sur les figures 4.15a et b. Néanmoins, l'écart est relativement faible et l'utilisation d'un coefficient de pertes moyen pour tous les faisceaux est une bonne approximation, dans la limite où les coefficients réels ne sont pas trop différents les uns des autres.

Le gain paramétrique n'étant non nul que lorsque les ondes pompe, signal et complémentaire sont copropageantes, les OPO symétriques n'amplifient le signal et le complémentaire que lors du trajet aller de la pompe puisque celle-ci est transmise par la facette de sortie. Il existe une alternative au schéma symétrique qui consiste à réfléchir la pompe sur la facette de sortie. Dans cette configuration à double passage de la pompe, le gain au seuil est réduit car l'OPO amplifie le signal et le complémentaire lors de leur passage aller et retour. Bjorkholm *et al.* ont déterminé les nouvelles expressions

35. Cette longueur est un compromis entre performance atteignable et homogénéité des guides.

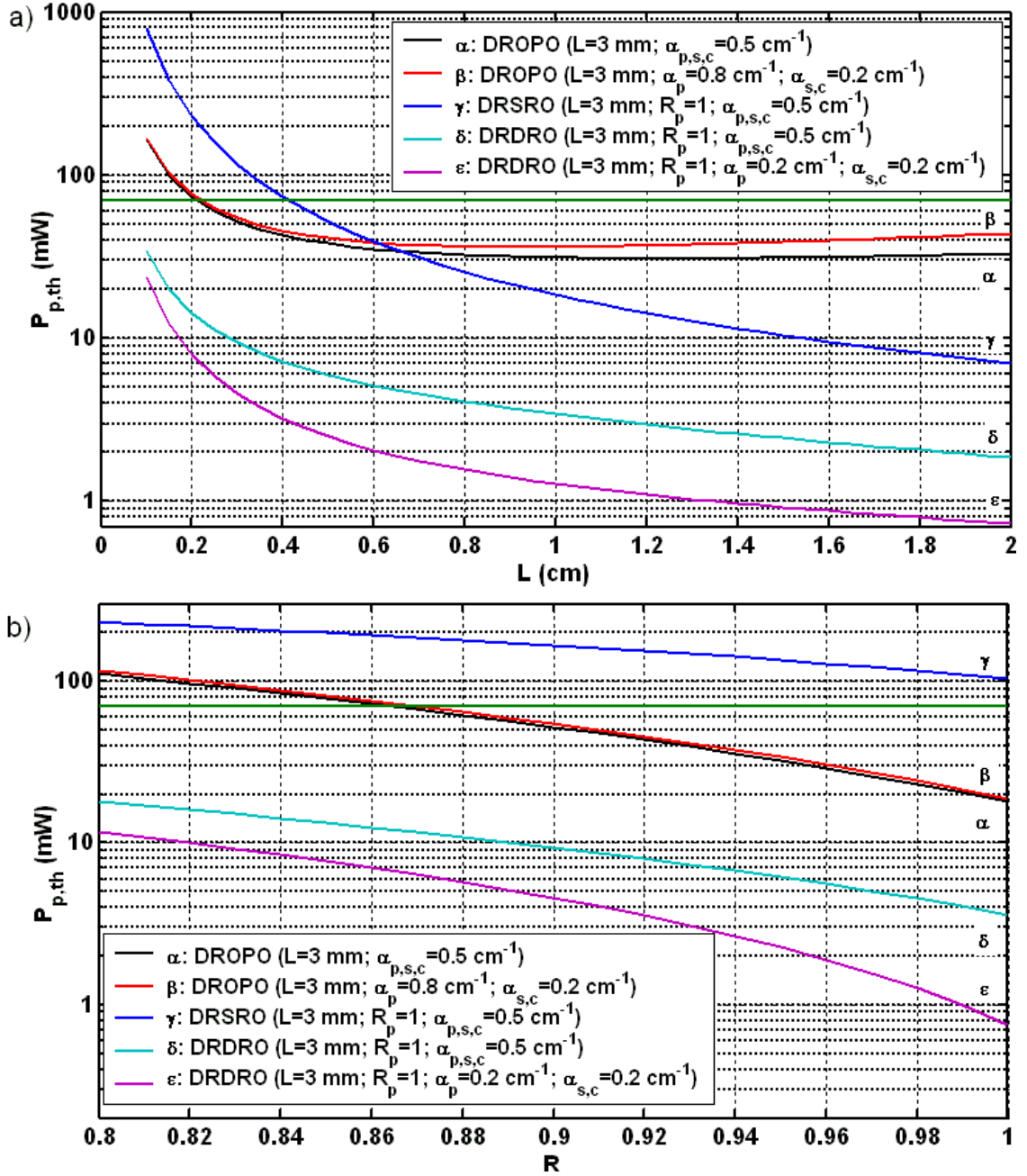


FIGURE 4.15 – Variation de la puissance de pompe au seuil d'oscillation en fonction de a) la longueur du guide d'ondes et b) la réflectivité des facettes. Évolution pour un DROPO à simple passage, en considérant les pertes liées à la pompe égales (α) ou supérieures (β) à celles du signal et du complémentaire, pour un SROPO (γ) et un DROPO (δ et ϵ) à double passage avec $\Delta k = 0$.

du gain au seuil [129], reproduites ci-dessous pour le DPSRO³⁶ et pour le DPDRO³⁷ respectivement :

$$(g_{th}L)^2 \simeq \frac{2[1 - R_s \exp(-\alpha_s L)]}{1 + R_p} \quad (4.12)$$

$$(g_{th}L)^2 \sin^2(\Delta k L) = \frac{[1 - R_s \exp(-\alpha_s L)][1 - R_c \exp(-\alpha_c L)]}{1 + R_p + 2\sqrt{R_p} \cos(\Delta\varphi + \Delta k L)} \quad (4.13)$$

où $\Delta\varphi = \varphi_p - \varphi_s - \varphi_c$ est le déphasage des faisceaux lors de leur réflexion sur la facette de sortie. Lorsque $R_p=1$ et que $\Delta k=0$, le gain au seuil d'un DPDRO est atteint pour une puissance de pompe quatre fois moindre que dans le cas du DROPO si $\Delta\varphi$ est nul (voir les courbes δ et ϵ sur les figures 4.15a et b). Lorsque $\Delta\varphi \neq 0$, cette réduction du seuil d'oscillation est moins importante. Dans le cas du DPSRO, le gain au seuil est réduit d'environ un facteur deux par rapport au SROPO (voir la courbe γ sur les figures 4.15a et b). Toutefois cette dernière configuration ne permet pas d'obtenir le seuil d'oscillation paramétrique pour des puissances de pompe inférieures au seuil de dommage. En conséquence nous nous sommes tournés vers la conception et la réalisation d'OPO doublement résonant à simple ou double passage pour la pompe, et ce malgré les problèmes de stabilité de ce type de cavité évoqués en section 1.1.5.

4.4.1 Conception et réalisation de miroirs intégrés aux guides d'ondes

Plusieurs solutions sont disponibles pour réaliser une cavité DROPO dont le milieu non-linéaire est un de nos guides d'ondes. Les plus répandues dans le cas des guides d'ondes sont les miroirs de Bragg³⁸. Ces structures consistent en une modulation alternée de l'indice effectif des modes guidés. Elles peuvent être fabriquées de différentes façons et en particulier par dépôt de couches minces diélectriques sur les facettes du guide, ou par gravure, *via* lithographie, de corrugations à sa surface.

Le principe de fonctionnement de ces structures est bien connu [24]. Chaque interface entre deux milieux d'indice de réfraction différents contribue à une réflexion de

36. Double-Pass Single Resonant Optical parametric oscillator.

37. Double-Pass Doubly Resonant Optical parametric oscillator.

38. Le dépôt de films métalliques (aluminium, argent, or) est aussi répandu. Toutefois ces matériaux sont souvent absorbants dans le NIR-MIR [130] causant des problèmes de dissipation de la chaleur.

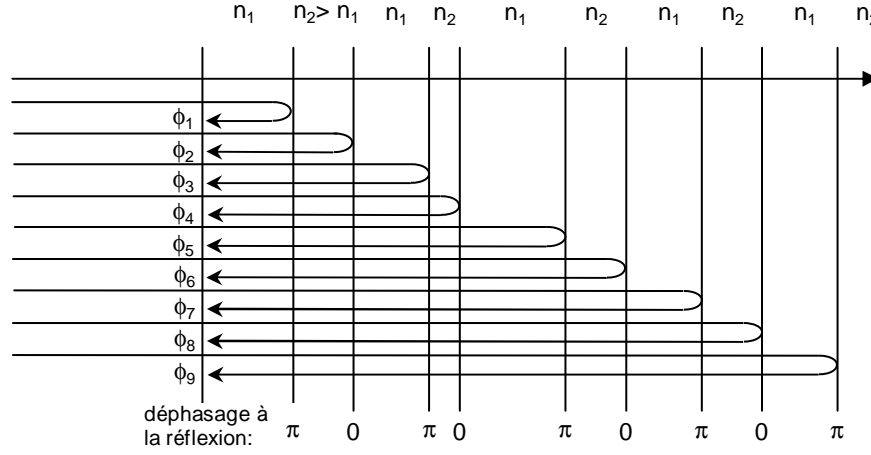


FIGURE 4.16 – Représentation schématique du fonctionnement d'un miroir de Bragg non périodique : si le déphasage ϕ_1 à ϕ_9 des ondes est égal, à *modulo* 2π près, elles interfèrent constructivement, résultant en une forte réflectivité de l'onde incidente.

Fresnel. Pour des longueurs d'onde spécifiques, le déphasage accumulé à la traversée des différents milieux additionné au déphasage à la réflexion est tel que chaque portion du faisceau réfléchi interagit de manière constructive avec les autres. Ainsi, comme l'illustre la figure 4.16, si le déphasage total après un aller-retour, ϕ_i ($i=1$ à 9), de chaque faisceau réfléchi est tel que $\phi_1 = \phi_2 + 2m\pi = \dots = \phi_9 + 2n\pi$ alors les ondes interfèrent constructivement, ce qui résulte en une forte réflexion de l'onde incidente. La réflectivité atteinte dépend du nombre de fois que l'indice change et du contraste d'indice entre les deux milieux. La largeur de l'intervalle des longueurs d'onde réfléchies, appelé bande d'arrêt, est essentiellement déterminée par le contraste d'indice.

Nous avons donc, en collaboration avec Xavier Lafosse du *Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN)*, conçu et travaillé à la fabrication de miroirs de Bragg distribués et de miroirs multicouches diélectriques. À la suite nous présentons les résultats de ces études. Dans les deux cas nous avons retenu un certain nombre de caractéristiques. Le miroir de la facette d'entrée ($M1$) doit être le plus transparent possible pour le faisceau de pompe. La réflectivité de l'interface air/GaAs étant d'environ 30 %, nous avons établi cette valeur comme limite supérieure de $M1$. Autant que possible, la réflectivité de $M1$ à la longueur d'onde de pompe, $R_1(\lambda_p)$, doit être la plus

proche de 0 afin de limiter l'oscillation de la pompe. En effet, si celle-ci oscillait nous obtiendrions une cavité triplement résonnante, encore plus instable qu'un DROPO [131]. Ensuite, la bande de réflexion des miroirs $M1$ et $M2$ (facette de sortie) doit être large et localisée autour $2.06 \mu\text{m}$ (longueur d'onde du signal à la dégénérescence) afin de réfléchir le signal et le complémentaire. Enfin, $M1$ et $M2$ doivent disposer d'une réflectivité pour le signal et le complémentaire supérieure à 87 %, comme nous l'avons vu sur la figure 4.15b. Par ailleurs, dans le cas d'un DRDRO, la réflectivité de $M2$ doit tendre vers 100 % pour la pompe.

4.4.2 Miroirs de Bragg distribués

Pour fabriquer les miroirs de Bragg nous nous sommes tout d'abord tournés vers la gravure de corrugations périodiques à la surface des guides d'ondes. Pour cela nous avons disposé des infrastructures du *LPN* consistant en l'utilisation des bâtis de gravure RIE (voir section 2.2.1) et ICP-RIE³⁹

D'un point de vue technologique, plusieurs contraintes sont à prendre en compte. Tout d'abord, les corrugations gravées ne peuvent avoir un rapport de forme inférieur au *ratio* largeur/profondeur $l/p = 1/5$. Ce facteur est très important et a dû être pris rigoureusement en compte lors de notre travail de conception des miroirs. Ensuite, en raison de sa nature en partie chimique, ce type de gravure n'est pas adapté à tous les matériaux. En particulier, des tests antérieurs à notre étude, effectués au *LPN*, ont montré que l'ICP-RIE grave mal les couches d'AlOx. En conséquence l'étape de gravure des miroirs ne peut être effectuée après oxydation sélective des guides d'ondes. Il nous a donc fallu envisager de la faire avant, c'est-à-dire soit après la gravure chimique des guides, soit en même temps qu'une gravure des guides par ICP-RIE. La première hypothèse nous confronte au problème d'oxydation par hydrolyse atmosphérique (oxydation à l'air ambiant). Une fois les flancs des guides découverts, l'hydrolyse des couches riches en aluminium démarre instantanément et bloque ensuite le processus d'oxydation sélective. Nous avons donc décidé de graver, au cours d'une seule et même étape, les guides d'ondes et les miroirs de Bragg.

La gravure de miroirs distribués à la surface des guides résulte en la présence d'un réseau. Or, une onde plane incidente sur un réseau donne naissance à des modes dif-

³⁹. Acronyme de Inductively Coupled Plasma RIE. Dans ce type de système, de grandes densités de plasma peuvent être obtenues et la gravure tend à être plus isotrope.

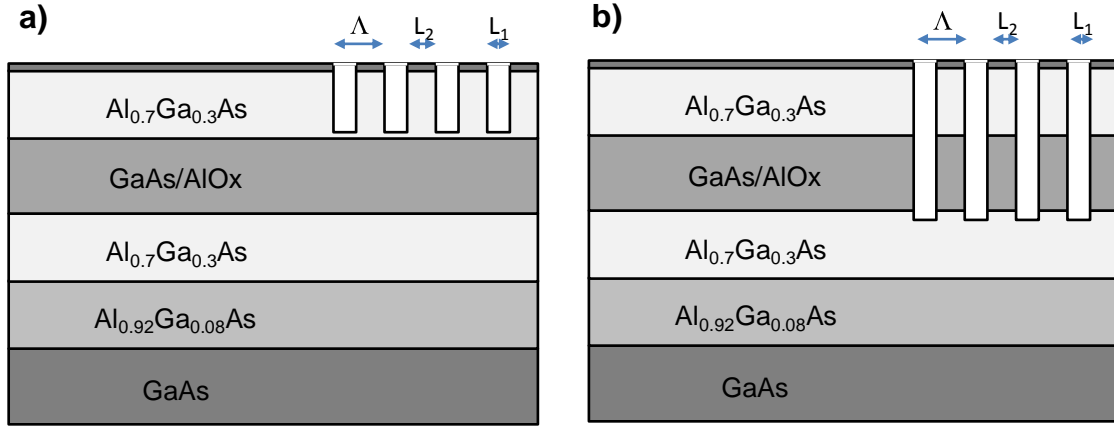


FIGURE 4.17 – Schémas de miroirs distribués : a) faibles corrugations (elles n'atteignent pas le cœur GaAs/AlOx ; b) corrugations profondes (elles découvrent complètement le cœur).

fractés, transmis et réfléchis. Du fait qu'une partie de l'énergie du mode incident se retrouve diffractée par le réseau, la méthode de modélisation des miroirs doit prendre en compte cette diffraction. Nous avons utilisé la méthode modale de Fourier (RCWA⁴⁰), très répandue dans le calcul électromagnétique des réseaux [132, 133]. Du fait de la périodicité du réseau, cette méthode décompose en série de Fourier la permittivité relative et les champs électrique et magnétique. Une fois obtenus les différents harmoniques du champ électrique, on peut déduire les coefficients de réflexion, de transmission et de diffraction du réseau de Bragg.

Le premier type de miroirs distribués que nous avons cherché à développer consistait en un miroir quart d'onde élaboré à partir de faibles corrugations, de hauteur h , à la surface du guide, c'est-à-dire dans le *cladding* supérieur et sans atteindre le cœur (cf. figure 4.17). Dans les zones gravées, l'indice effectif du mode TE_0 pour $\lambda = 2.06 \mu\text{m}$ est $n_{\text{TE}_0} = 3.1263$ alors qu'il vaut $n'_{\text{TE}_0} = 3.1250$ pour les zones gravées. Le pas du réseau était $\Lambda = L_1 + L_2 = 330 \text{ nm}$, avec $L_1 = L_2 = 165 \text{ nm}$ correspondant à la largeur des zones gravées et non gravées respectivement. Comme l'indiquent les figures 4.18a et b, la réflectivité est d'autant plus grande que le nombre de paires de miroirs est grand et que la corrugation est profonde. On constate que pour obtenir une réflectivité supérieure à

40. Acronyme anglais de Rigorous Coupled Wave Analysis.

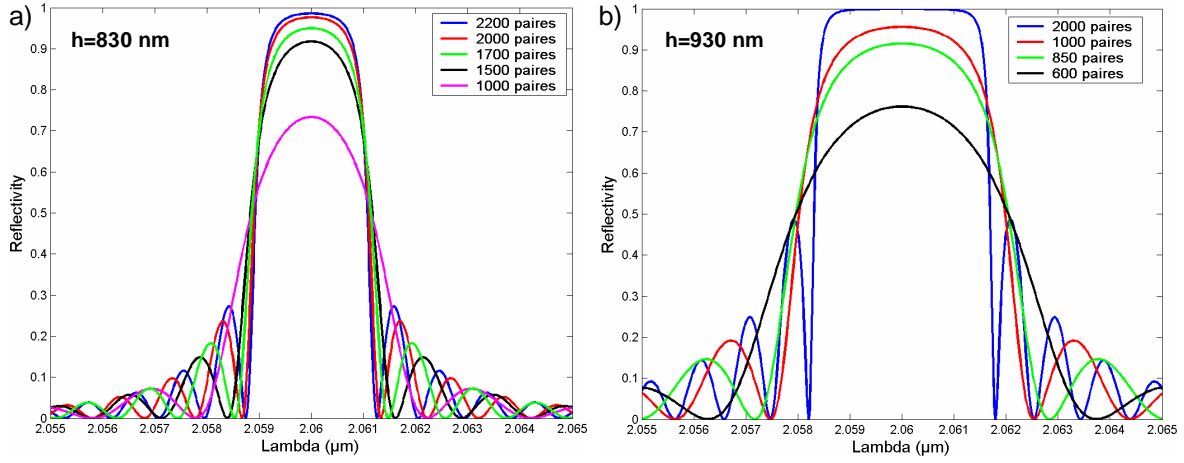


FIGURE 4.18 – Spectres de réflectivité de miroirs quart d’onde avec de faibles corrugations. La réflectivité dépend du nombre de répétition et de la hauteur, h , des corrugations. Cette hauteur est de 830 et 930 nm sur la figure a) et b) respectivement.

90 % il faut graver autour de 1000 paires (1500 et 850 pour une corrugation profonde de 830 et 930 nm respectivement). Cette valeur correspond à des miroirs de l’ordre de $330 \mu\text{m}$ parfaitement réalisables d’un point de vue technologique. Néanmoins, la largeur de la bande d’arrêt dépendant du contraste d’indice entre les zones gravées et non gravées, on observe sur tous les spectres que celle-ci est limitée à quelques nanomètres. Cette largeur de bande d’arrêt étant trop restreinte pour un OPO, dont l’intérêt est d’être largement accordable, nous avons abandonné cette solution.

Nous avons alors opté pour une stratégie différente, consistant à graver profondément les guides (cf. figure 4.17). Dans ce cas là, on trouve une différence d’indice effectif très importante⁴¹, permettant de réfléchir une grande partie de l’énergie incidente à chaque interface. Nous avons tout d’abord déterminé la profondeur minimale des corrugations pour obtenir une réflexion supérieure à 87 %. Nous avons constaté qu’il faut graver environ $2.5 \mu\text{m}$, ce qui correspond à découvrir tout le cœur et la moitié du *cladding* inférieur. Cela équivaut à forcer l’intégralité du mode propagé à “voir” un contraste d’indice abrupt⁴². En tenant compte du rapport de forme évoqué plus haut,

41. $\Delta n = n_{TE_0}(\lambda = 2.06 \mu\text{m}) - n_{air} \approx 2.1$.

42. Avant cela, dès que le fond de gravure “touche” le mode, la différence d’indice effectif aux interfaces augmente, le mode commence à diffracter, et jusqu’à 70 % de son énergie peut quitter le guide de cette façon.

nous avons fait le constat que les corrugations ne pouvaient faire moins de 500 nm de large.

Afin d'avoir une haute réflectivité autour de 2 μm nous avons modélisé la réflectivité d'un réseau ($\lambda/4; 3\lambda/4$) pour lequel $L_1=515$ nm et $L_2=492$ nm. On voit sur la figure 4.19a que le seuil d'oscillation, symbolisé par la ligne pointillée horizontale correspondant à $R=87$ %, ne peut être atteint si l'on a deux corrugations gravées à seulement 2.4 μm . En revanche, si l'on grave le réseau à environ 2.5 μm , la réflectivité atteint le seuil de 87 % sur un intervalle de 170 nm centré autour de 2.06 μm . Les mêmes motifs, répétés cinq fois, permettent de dépasser un peu plus encore ce seuil si la profondeur des corrugations approche 2.5 μm . Dans ce cas la réflectivité dépasse le seuil de 87 % sur un intervalle de 350 nm centré autour de 2.06 μm . Nous avons donc retenu cette solution.

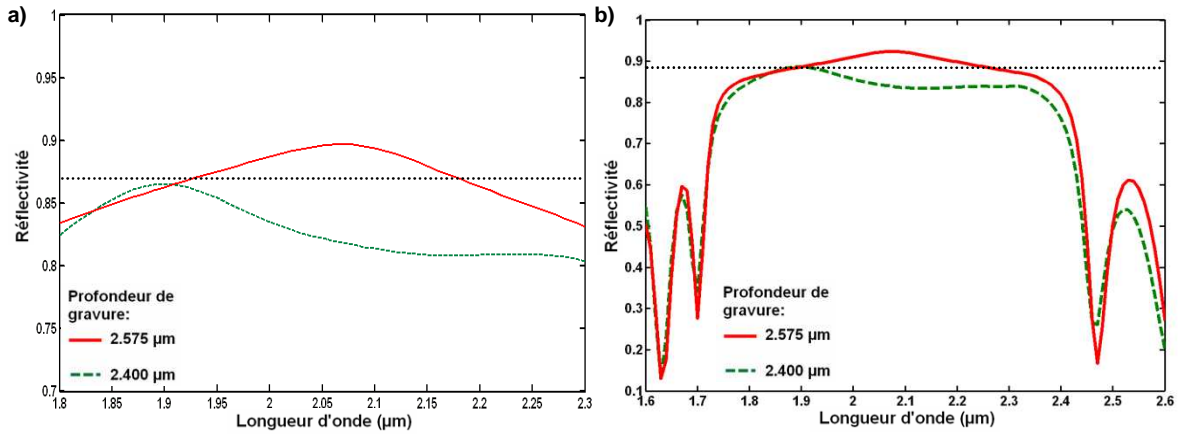


FIGURE 4.19 – Spectres de réflectivité de miroirs quart d'onde avec des corrugations profondes. Le motif $L_1=515$ nm - $L_2=492$ nm est répété a) deux fois ou b) cinq fois et les corrugations sont plus ou moins profondes.

Parallèlement nous avons commencé des tests de gravure de guide d'ondes par ICP-RIE. Nous avons observé que le contrôle de la gravure de guides d'ondes sur plusieurs millimètres était ardu. En particulier, nous avons pu constater des interruptions de la gravure des guides comme illustré sur les figures 4.20. En outre, la hauteur des guides n'était pas toujours la hauteur visée. Par exemple, sur la figure 4.21a on voit que le fond de gravure est sous le *cladding* inférieur, découvrant ainsi la couche *buffer* très facilement oxydable. Nous avons aussi constaté que cette technique de gravure induisait de la rugosité sur les flancs des guides (voir figure 4.21b). Toutes ces imperfections

se traduisent en terme de pertes de propagation supplémentaires. Nous avons ainsi mesuré des pertes de 3 à 7 cm^{-1} sur les guides gravés par ICP-RIE. Ces imperfections ont été attribuées à l'utilisation d'une résine négative au cours du process. Celle-ci ne permettait pas d'atteindre une résolution suffisante des motifs. En conséquence nous n'avons pas poursuivi notre travail de fabrication de miroirs distribués et avons porté notre attention sur le dépôt de miroirs diélectriques.

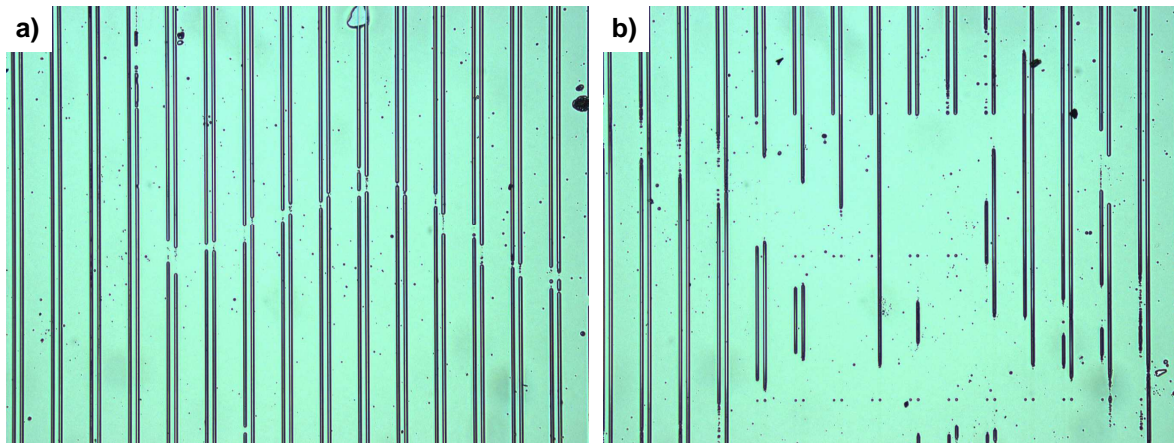


FIGURE 4.20 – Gravure de guides par ICP-RIE interrompue en plusieurs endroits.

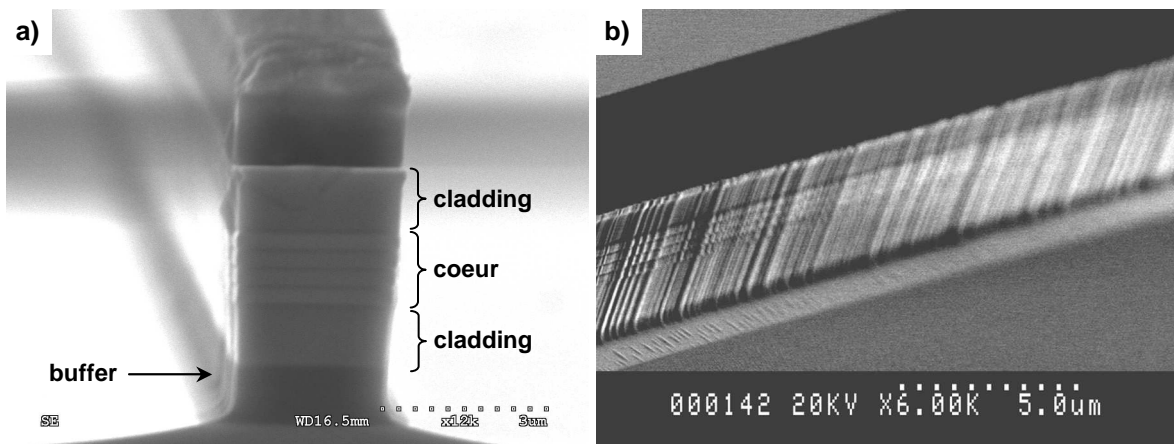


FIGURE 4.21 – Mauvais contrôle de la profondeur de gravure (a) et rugosité induite des flancs (b).

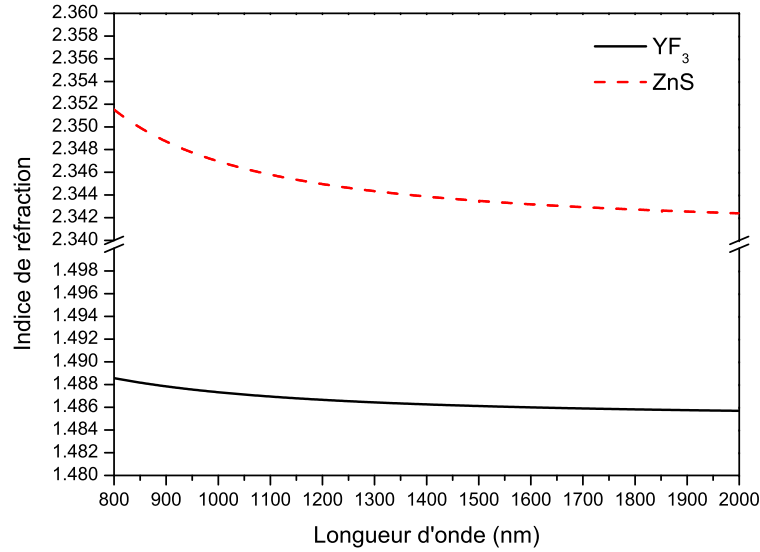


FIGURE 4.22 – Indices de réfractions de ZnS et de YF₃ (source : mesures ellipso-métriques par Xavier Lafosse, LPN).

4.4.3 Multicouches diélectriques

La seconde piste que nous avons étudiée prévoit la réalisation de miroirs diélectriques. La conception de ceux-ci a été faite avec la méthode de la matrice de transfert 1D [24], méthode moins coûteuse en temps que la méthode RCWA mentionnée précédemment. Le choix des matériaux pour les dépôts a été effectué en tenant compte des matériaux disponibles au LPN, de leur absorption dans le NIR-MIR et du contraste d'indice atteignable. Nous avons donc sélectionné dans un premier temps la paire YF₃/ZnS, souvent utilisée dans le moyen IR. L'indice de réfraction des deux matériaux a été caractérisé (cf. figure 4.22) pour le calcul des structures. Ces dernières ont été optimisées au moyen d'un algorithme permettant de minimiser une fonction de mérite prenant en compte leur réflectivité en différentes régions spectrales et leur épaisseur totale. Dans un second temps, ces structures ont été de nouveau optimisées à l'aide du logiciel *Essential Macleod* de Thin Film Center Inc. utilisé au LPN.

La réponse spectrale de la structure conçue, reportée dans le tableau 4.1, remplit les conditions imposées par une cavité DROPO, c'est-à-dire une haute transmittivité pour la pompe autour de 1.03 μm , et une haute réflectivité pour le signal et le complémentaire autour de 2.06 μm . Sur la figure 4.23a nous observons une très bonne correspondance entre le spectre simulé (en tirets) et la réponse expérimentale mesurée

Matériau	n	L_{opt_0} (λ_0)	L_0 (nm)	L (nm)	Erreur (%)
Air	1				
YF ₃	1.455	0.139	98.4	98.4	0.0
ZnS	2.342	0.389	171.1	172.4	0.8
YF ₃	1.455	0.418	295.9	293.8	0.7
ZnS	2.342	0.580	255.1	261.2	2.4
YF ₃	1.455	0.439	310.8	308.6	0.7
ZnS	2.342	0.518	227.8	230.0	1.0
YF ₃	1.455	0.503	356.1	355.4	0.2
ZnS	2.342	0.433	190.4	196.1	3.0
YF ₃	1.455	0.623	441.0	439.6	0.3
ZnS	2.342	0.356	156.6	158.8	1.4
YF ₃	1.455	0.460	325.6	324.9	0.2
GaAs			substrat		
		Total	2828.8	2839.2	

TABLE 4.1 – Structure réfléchissante YF₃/ZnS : n est l'indice de réfraction, L_{opt_0} l'épaisseur optique visée à $\lambda_0=1.03 \mu\text{m}$, L_0 l'épaisseur visée en nm et L l'épaisseur effectivement déposée.

au FTIR sur un substrat témoin en GaAs. Sur l'intervalle 980-1080 nm la réflectivité est inférieure à 5 %, limitant les effets d'oscillation de la pompe. Sur l'intervalle 1.75-2.3 μm la réflectivité dépasse le seuil de 90 % permettant, en principe, d'obtenir l'oscillation paramétrique.

Cette structure a été déposée au *LPN* sur les facettes de deux échantillons. Malheureusement nous avons constaté une faible transmission de la pompe à travers les guides (de l'ordre de 5 à 10 % au lieu de 20 à 30 % typiquement), suggérant que les pertes de propagation étaient très importantes. Effectivement, des observations au MEB des échantillons nous ont permis de constater plusieurs problèmes, illustrés sur la figure 4.24. Tout d'abord, nous avons constaté la présence d'un dépôt blanc, visible à l'oeil nu, à la surface des échantillons. Cette couleur est caractéristique du ZnS, qui est connu pour sa diffusion mal contrôlée. Au lieu de se déposer uniquement sur les facettes des échantillons il a tendance à diffuser dans tous les espaces libres de l'en-

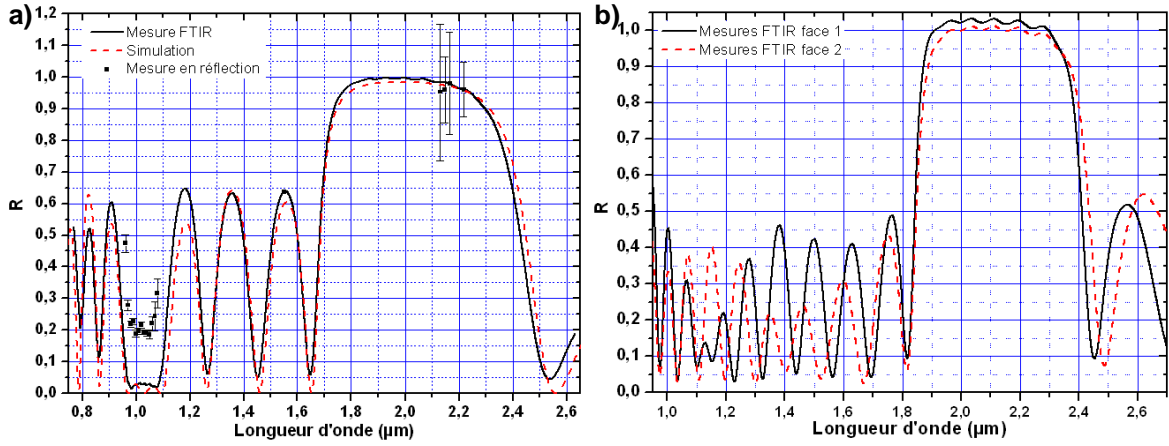


FIGURE 4.23 – Spectres de réflectivité des miroirs diélectriques testés : a) miroirs YF_3/ZnS et b) miroirs $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$.

ceinte, et à se déposer sur toutes les régions non protégées. Comme on peut le voir sur la figure 4.24a, des “brindilles” se forment au-dessus et sur les flancs des guides d’ondes, très certainement responsables d’une forte diffusion des modes guidés. Sur la figure 4.24b, on constate que le dépôt diélectrique, sur les facettes des guides peut prendre la forme de “bourrelets” dont la surface n’est pas lisse. Cet effet peut être une conséquence de l’aspect rugueux des facettes des guides avant dépôt. En effet nous avons expliqué que lors de leur transformation en AlOx , les couches d’ $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ se contractaient. Une facette avec un dépôt diélectrique tel que celui présenté entraîne certainement des pertes de couplage très importantes. Enfin, il arrive que le dépôt diélectrique se détache des facettes, comme cela est représenté sur la figure 4.24c. Ce problème peut être une conséquence de l’aspect rugueux des facettes avant dépôts. Des tests de tenue du dépôt sous flux intenses nous ont permis de constater que les dépôts résistent à des puissances incidentes de l’ordre du watt, ce qui exclut le détachement visible sur la figure 4.24c pour nos puissances incidentes typiques de quelques dizaines de mW.

Malgré ces problèmes, nous avons fait des mesures de réflectivité du dépôt diélectrique déposé sur les facettes sur trois régions spectrales différentes : autour de $1\ \mu\text{m}$, à $1.55\ \mu\text{m}$ et autour de $2.15\ \mu\text{m}$. Autour de $1\ \mu\text{m}$ nous avons utilisé une source Ti :Saphir Specra-Physics 3900 CW fournissant un signal d’environ 1.5 GHz de largeur spectrale. Le signal à $1.55\ \mu\text{m}$, de largeur spectrale inférieure à 1 MHz, a été fourni par un Tunic MC 100. Enfin le signal autour de $2.15\ \mu\text{m}$ a été obtenu par différence de fréquence

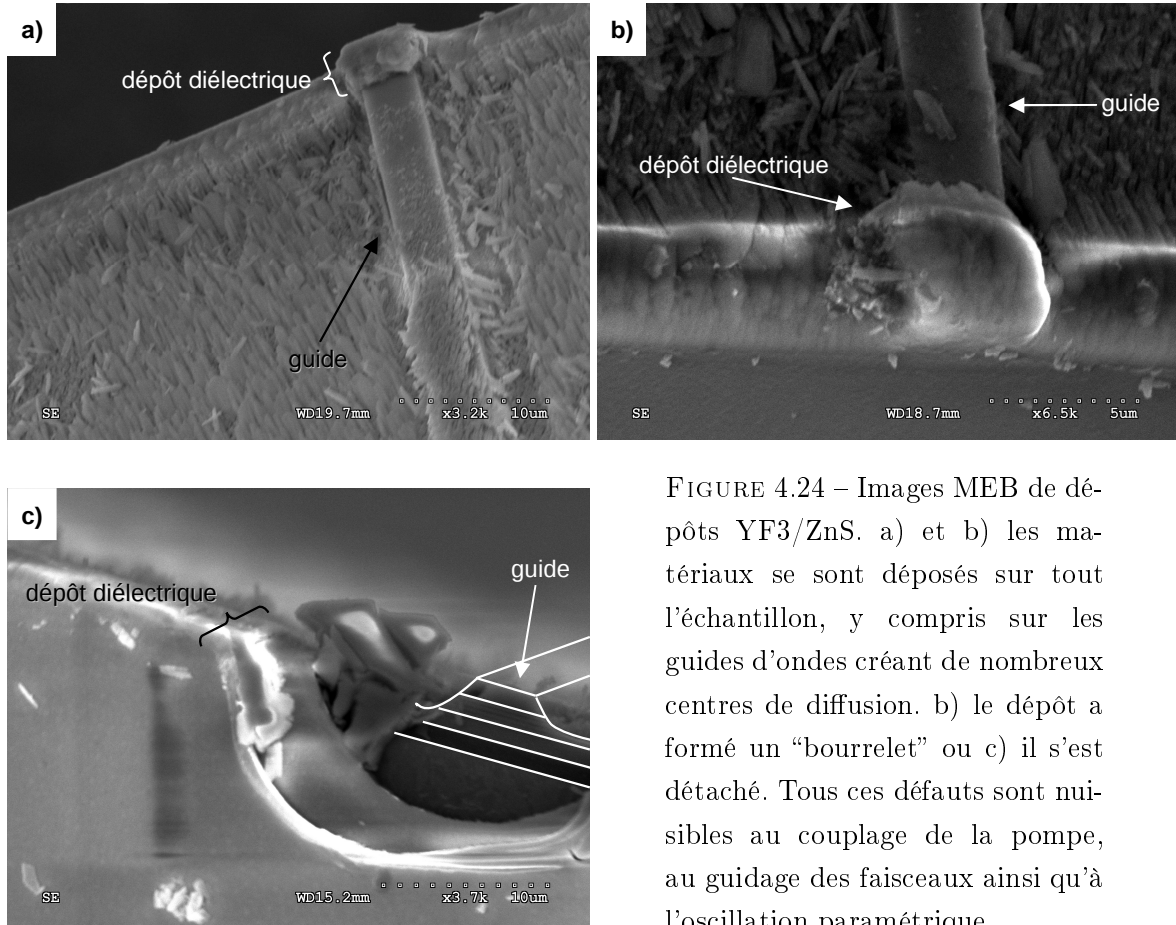


FIGURE 4.24 – Images MEB de dépôts YF_3/ZnS . a) et b) les matériaux se sont déposés sur tout l'échantillon, y compris sur les guides d'ondes créant de nombreux centres de diffusion. b) le dépôt a formé un "bourrelet" ou c) il s'est détaché. Tous ces défauts sont nuisibles au couplage de la pompe, au guidage des faisceaux ainsi qu'à l'oscillation paramétrique.

dans un cristal PPLN entre la source Ti :Saphir Specra-Physics 3900 CW émettant vers $0.696 \mu\text{m}$ et un laser ELS Versadisk CW Yb :YAG fournissant un signal autour de $1.03 \mu\text{m}$ (cf. figure 4.6). La mesure consistait à comparer la puissance incidente (P_i) et la puissance réfléchie (P_r) par le dépôt diélectrique. Pour cela nous avons fait passer le faisceau incident à travers un cube séparateur 50/50 : 50 % de la puissance incidente est détectée par un photodétecteur (photodiode Ge pour les mesures à 1 et $1.55 \mu\text{m}$ et photodiode InGaAs pour les mesures à $2.15 \mu\text{m}$), les 50 % restant sont envoyés vers le dépôt. Au retour, le signal réfléchi passe à nouveau par le cube séparateur : 50 % de la puissance réfléchie part vers un second photodétecteur (dans la direction opposée au premier), les 50 % restant repartent vers la source émettrice. Le rapport P_r/P_i nous donne la réflectivité du dépôt. Les résultats, présentés sur la figure 4.23a sont en

très bon accord avec les simulations et les mesures FTIR sur substrat GaAs autour de $2.15\ \mu\text{m}$ et $1.55\ \mu\text{m}$. En revanche, autour de $1\ \mu\text{m}$ la réflectivité est légèrement supérieure à celle attendue. Ceci peut être une conséquence des légers écart entre les épaisseurs de couches déposées et les épaisseurs nominales (cf. tableau 4.1). Néanmoins, la réflectivité demeure inférieure à la réflectivité à l'interface air/GaAs, autorisant un meilleur couplage du faisceau de pompe que sans dépôt diélectrique.

En raison de la tendance du ZnS à se déposer partout, nous avons modélisé deux structures basées sur la paire de matériaux SiO_2 et TaO_x . Ces structures sont présentées dans le tableau 4.2. La structure “Face2” a été conçue et déposée après avoir mesuré la difficulté de déposer la structure “Face1”, épaisse de près de $5\ \mu\text{m}$. Les deux structures ont néanmoins une bande d'arrêt très similaire autour de $2.1\ \mu\text{m}$, seulement différenciable par l'amplitude de leur réflectivité. Celle-ci est en effet un peu plus faible pour “Face2” que pour “Face1” (cf. figure 4.23b). Par manque de temps, nous n'avons pas pu caractériser les guides d'ondes en cavité au moment où nous écrivons ces lignes.

4.5 Conclusion

Dans le travail présenté dans ce chapitre, nous avons progressé dans la compréhension et la caractérisation des paramètres critiques pour l'obtention de l'oscillation paramétrique : pertes de propagation, coefficient de gain paramétrique normalisé et réflectivité des facettes des guides d'ondes GaAs/AlOx.

Tout d'abord nous avons cherché à évaluer la conséquence de la rugosité des interfaces GaAs/AlOx caractérisée dans le chapitre 3. Pour cela nous sommes partis du modèle de diffusion surfacique de la lumière développé par Lacey et Payne dans les années 90. Nous l'avons appliqué aux guides d'ondes multicouches et avons montré que l'on pouvait attribuer à la rugosité des interfaces, un coefficient de pertes d'environ $0.28\ \text{cm}^{-1}$ en bon accord avec les mesures expérimentales. Nous avons souligné que ce résultat comporte une barre d'erreur relativement grande en raison de la dépendance en σ^2 du coefficient de pertes et des barres d'erreur sur l'amplitude et la longueur de cohérence de la rugosité. Celles-ci sont dues en grande partie à l'épaisseur des lames MET et leur réduction passe nécessairement par la fabrication de lames plus minces. Nous avons aussi noté la faible influence de paramètres tels que l'épaisseur ou l'indice de réfraction des couches d'AlOx.

Matériau	Face 1			Face 2		
	n	$L_{opt} (\lambda_0)$	L (nm)	n	$L_{opt} (\lambda_0)$	L (nm)
Air	1			1		
Ta ₂ O ₅	2.100	0.5065	248.4		/	
SiO ₂	1.491	0.3987	275.3		/	
Ta ₂ O ₅	2.138	0.6351	306.0	2.134	0.5893	284.4
SiO ₂	1.477	0.4944	344.8	1.491	0.4915	339.5
Ta ₂ O ₅	2.154	0.5279	252.4	2.108	0.4434	216.6
SiO ₂	1.499	0.5121	351.8	1.496	0.5529	380.6
Ta ₂ O ₅	2.134	0.5041	243.3	2.121	0.5278	256.2
SiO ₂	1.488	0.5082	351.8	1.484	0.5014	347.9
Ta ₂ O ₅	2.179	0.5199	245.7	2.089	0.5171	254.9
SiO ₂	1.489	0.4964	343.2	1.504	0.5145	352.3
Ta ₂ O ₅	2.109	0.5250	256.4	2.144	0.5132	246.5
SiO ₂	1.492	0.5025	346.8	1.490	0.4974	343.8
Ta ₂ O ₅	2.123	0.5181	251.3	2.123	0.5142	249.4
SiO ₂	1.492	0.5122	353.5	1.488	0.5166	357.4
Ta ₂ O ₅	2.114	0.4863	236.8	2.106	0.5067	247.8
SiO ₂	1.496	0.524	360.8	1.493	0.5389	371.8
GaAs		substrat			substrat	
		Total	4768.3		Total	4249.1

TABLE 4.2 – Structure réfléchissante Ta₂O₅/SiO₂ : n est l'indice de réfraction, L_{opt} l'épaisseur optique déposée à $\lambda_0=1.03 \mu\text{m}$ et L l'épaisseur déposée.

Ensuite nous avons présenté la première mesure d'amplification paramétrique dans un guide d'ondes d'onde semiconducteur, réalisée en collaboration avec Marco Ravaro au cours de sa thèse. Au cours d'une expérience de fluorescence paramétrique stimulée, un signal injecté dans un guide de 3 mm de long a pu être amplifié de 4.5 % à l'aide de 30 mW de pompe. Un coefficient de gain paramétrique, $g/\sqrt{P_p} \approx 4.1 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W}^{-1/2}$, a été déduit. Cette valeur est en bon accord avec celle de Ravaro *et al.* obtenue *via* des mesures de fluorescence paramétrique et de SHG ($g/\sqrt{P_p} \approx 3.9 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W}^{-1/2}$) [9]. Cette valeur est par ailleurs compatible avec l'obtention de l'oscillation paramétrique.

Le seuil d'oscillation dépendant des pertes du guide, nous avons mené une étude systématique afin de trouver les conditions d'oxydation les minimisant. Nous avons montré que les pertes diminuent à mesure que le temps d'oxydation est plus court. Une façon de réduire ce temps est d'augmenter la température du four d'oxydation. Nous avons constaté qu'il existe un temps optimal d'oxydation correspondant à l'instant où les deux fronts se rejoignent. Au-delà de ce temps, les pertes tendent à augmenter. Sans l'avoir formellement observé au MET, nous pouvons supposer que cette augmentation est liée à une augmentation de la rugosité des interfaces. Enfin, en raison d'une variation brutale des pertes à 430°C, nous avons décidé de maintenir la température du four à 420°C pour des raisons de reproductibilité des résultats.

Finalement, en tenant compte du coefficient de gain paramétrique et des pertes standard des guides AlOx, nous avons recherché les conditions pour observer l'oscillation paramétrique. Nous avons montré qu'une cavité SROPO n'était pas envisageable, car la puissance de pompe que l'on peut coupler dans les guides ne permet pas de passer le seuil d'oscillation paramétrique. En configuration DROPO en revanche, nous avons montré que des facettes réfléchissant au moins 87 % du signal et du complémentaire suffisent à passer ce seuil. Nous avons donc conçu des miroirs distribués reposant sur une fabrication par ICP-RIE en même temps que les guides d'ondes. Nous nous sommes confrontés à des niveaux de pertes de propagation des guides nous obligeant à abandonner cette voie. Nous avons alors conçu et réalisé des miroirs diélectriques. Malgré un spectre de réflexion des témoins déposés sur substrat, répondant parfaitement à nos critères, les miroirs YF₃/ZnS ne nous ont pas donné satisfaction. En raison de problèmes liés aux guides (rugosité des facettes) ou à la nature des matériaux diélectrique (diffusion et dépôt du ZnS sur tout l'échantillon), nous n'avons pu caractériser la cavité. Nous avons alors réalisé une autre cavité, en déposant des miroirs SiO₂/TaO_x, dont la caractérisation est en cours.

Conclusion générale

Cette thèse a été consacrée à l'étude de guides d'ondes pour l'optique non-linéaire. Ces dispositifs, du fait du fort confinement des ondes interagissantes, offrent la possibilité d'obtenir des efficacités de conversion plus importantes que leurs homologues massifs. Bien que le LiNbO_3 ait longtemps été le cristal de choix pour la conversion de fréquences en guides d'ondes, le GaAs, utilisé dans notre cas, est une bonne alternative en raison d'une plus grande non-linéarité, d'une gamme spectrale de transparence plus large et de son intégration possible avec d'autres dispositifs optoélectroniques. Pourtant, le GaAs est optiquement isotrope ce qui empêche l'obtention de l'accord de phase. Plusieurs solutions ont été développées ces dernières années pour contourner cet inconvénient, dont l'accord de phase par biréfringence de forme mis en œuvre dans nos guides d'ondes. Celui-ci repose sur la présence de fines couches d'AlOx dans le cœur guidant constitué de GaAs, entraînant des conditions aux interfaces différentes pour les modes polarisés TE et TM. Toutefois l'obtention de ces couches d'AlOx nécessite d'oxyder de façon sélective des couches initiales d' $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ lors du processus technologique. Cette oxydation entraîne une hausse des pertes de propagation des guides d'ondes de 0.1 à 0.5 cm^{-1} . Malgré les résultats encourageants obtenus ces dernières années dans de tels guides d'ondes, ces pertes demeurent un frein au développement d'un oscillateur paramétrique intégrée. Dans cette thèse nous avons donc tenter de répondre à la question : y-a-t-il des modifications au niveau microscopique pouvant expliquer une augmentation des pertes ?

Dans un premier temps nous nous sommes focalisés sur l'étude, par microscopie électronique en transmission (MET), des conséquences de l'oxydation sélective humide. Une fois identifié un moyen de produire des lames minces adaptées à la MET, nous avons caractérisé la rugosité des interfaces $\text{GaAs}/\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ et $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$ dans les guides d'ondes non oxydés et GaAs/AlOx et $\text{Al}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}/\text{AlOx}$ dans les

guides d'ondes oxydés. Alors que dans les guides non oxydés la rugosité des interfaces vaut 0.37 nm rms⁴³, valeur typique dans les hétérostructures GaAs/AlAs, celle-ci augmente de 43 et 86 % pour atteindre 0.53 et 0.69 nm pour les interfaces GaAs/AlOx et Al_{0.7}Ga_{0.3}As/AlOx respectivement. Pour obtenir ces paramètres nous avons dû analyser des images, composées de plusieurs clichés HAADF, dont la taille est sans doute trop restreinte dans le cas des échantillons oxydés, conduisant à des sous-estimations des valeurs réelles de la rugosité. En conséquence, bien que déjà importante, l'amplitude de la rugosité est une borne inférieure.

Par ailleurs, nous avons constaté, grâce à l'étude de cartographies EFTEM et d'images HAADF, que les couches adjacentes aux couches d'AlOx s'oxydaient sur quelques nanomètres à partir des interfaces. Dans le cas des couches de GaAs on détecte une couche de GaOx de 3 nm d'épaisseur entre l'AlOx et le GaAs. Dans le cas des couches d'Al_{0.7}Ga_{0.3}As, c'est une couche intermédiaire de 9 nm qui se forme entre l'AlOx et l'Al_{0.7}Ga_{0.3}As. Cette modification locale de la structure pourrait diminuer la non-linéarité du cœur. Quoique à priori incontournable, cet effet pourrait néanmoins être réduit en insérant, lors de la croissance, une fine couche de GaAs (≈ 5 nm) entre les couches d'AlOx et d'Al_{0.7}Ga_{0.3}As. Il serait aussi intéressant d'observer si une modification du temps d'oxydation pourrait réduire l'épaisseur de ces couches.

Enfin nous avons observé, sur des images HRTEM, la formation de grains polycristallins de γ -Al₂O₃ de 5 à 15 nm de diamètre dans une gaine d'alumine amorphe. Ces grains pourraient être responsable d'une diffusion volumique des modes propagés dans le guide.

Dans un second temps nous avons essayé de répondre aux questions suivantes. La rugosité des interfaces peut-elle être responsable des pertes de propagation supplémentaires de 0.4 cm⁻¹ s'ajoutant aux 0.1 cm⁻¹ avant oxydation ? Peut-on réduire ces pertes en modifiant les conditions d'oxydation ? Quelle influence ces pertes ont-elles sur le seuil d'oscillation paramétrique ? Tout d'abord, en utilisant le modèle de Lacey et Payne, nous avons estimé de manière semi-analytique les pertes dues à la diffusion aux interfaces rugueuses. Une approximation simple conduit à des valeurs de l'ordre de 0.3 cm⁻¹, en accord raisonnable avec les mesures expérimentales. La contribution éventuelle d'une diffusion due à la présence de grains polycristallins n'a pas été évaluée

43. rms : moyenne quadratique. Elle est définie par $\bar{x} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i^2}$.

en raison de la complexité du problème, nécessitant des calculs 3D.

Afin de réduire l'impact de l'oxydation sur les pertes de propagation, nous avons ensuite effectué des mesures systématiques de celles-ci en modifiant les conditions d'oxydation (durée et température). Quelle que soit la température d'oxydation il apparaît une durée optimale pour laquelle les pertes sont minimales. De plus, nous avons constaté que ces pertes optimales diminuent à mesure que la température d'oxydation augmente. Bien que pour une température de 430°C les pertes optimales sont réduites de 20 % par rapport à l'oxydation à 420°C, le contrôle de la progression des fronts d'oxydation est plus difficile car la cinétique est très rapide. La principale conséquence de cela est que les pertes peuvent être très supérieures à 0.5 cm^{-1} si l'oxydation est mal contrôlée à 430°C.

Au début de cette thèse, coïncidant avec la fin de la thèse de Marco Ravaro, nous avons effectué, pour la première fois dans des guides d'ondes semiconducteur, une mesure d'amplification paramétrique. Dans un guide d'ondes de longueur $L=3 \text{ mm}$, nous avons injecté en même temps 30 mW de pompe et 500 μW de signal précurseur, et avons mesuré, en régime de faible gain, une amplification paramétrique $G=4.5 \%$. Cette valeur nous a permis d'évaluer le coefficient de gain paramétrique normalisé, $g/\sqrt{P_p}$, à $4.1 \pm 0.1 \text{ cm}^{-1}\text{W}^{-1/2}$, en bon accord avec les valeurs estimées antérieurement dans l'équipe DON *via* des mesures de fluorescence paramétrique et de SHG.

Compte tenu des caractéristiques de nos guides d'ondes GaAs/AlOx nous avons dessiné plusieurs cavités doublement résonnantes. Tout d'abord, nous avons conçu des miroirs distribués formés par de fortes corrugations (elles découvrent intégralement le cœur multicouche de la structure) dont l'amplitude de la bande d'arrêt dépasse 87 % sur une largeur de 350 nm autour de la longueur d'onde du signal à la dégénérescence $\lambda_s^0 = 2.06 \mu\text{m}$. Bien que la réflectivité permette, en principe, d'atteindre l'oscillation paramétrique, nous avons été confronté à des problèmes technologiques lors des tests préliminaires. Le mode de gravure, utilisé à la fois pour la formation des guides d'ondes et la création des corrugations, crée une trop grande rugosité sur les flancs des guides à l'origine de pertes de propagation trop importantes. Nous avons alors dessiné des miroirs diélectriques alternant YF_3 et ZnS . Des tests sur substrat montrent qu'avec 5 paires et demie, il est possible de réfléchir plus de 90 % du signal et du complémentaire sur un intervalle 1.75-2.3 μm . Malheureusement le dépôt sur les facettes des guides d'ondes est plus critique, et en raison de multiples défauts, ces miroirs n'ont pu être exploités. Un autre type de miroirs diélectrique, reposant sur l'utilisation de SiO_2 et

de TaO_x a été déposé et est actuellement en cours de caractérisation.

Compte tenu de ces résultats, il sera nécessaire de modifier les conditions d'oxydation pour minimiser les pertes de propagation dans nos guides d'ondes GaAs/AlOx. Ceci permettra de réduire le seuil d'oscillation et de l'éloigner ainsi du seuil d'endommagement des guides, aujourd'hui tous deux assez proches dans le cas d'un OPO doublement résonnant à simple passage de la pompe. En outre, une caractérisation des dépôts diélectriques devra être menée de manière à améliorer l'adhérence sur les facettes des guides, réduire les problèmes de dépôt à la surface des échantillons et obtenir une bonne reproductibilité du process. Ces deux points devraient permettre la réalisation d'un OPO intégré GaAs/AlOx. Alors on pourra se pencher sur l'objectif ambitieux de son intégration avec une source de pompage au sein d'un même dispositif.

Annexe A

Liste des symboles et abréviations

AlAs	Arséniure d'aluminium
$\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$	Arséniure d'aluminium et de gallium
AlOx	Oxyde d'aluminium
BF	Champ clair (Bright Field)
ICP(-RIE)	Gravure ionique réactive couplée à une torche à plasma (Inductively Coupled Plasma-RIE)
DF	Champ sombre (Dark Field)
DFG	Génération de fréquence différence (Difference Frequency Generation)
DROPO	Oscillateur paramétrique optique doublement résonnant (Doubly-Resonant OPO)
EELS	Spectroscopie de perte d'énergie des électrons (Electron Energy Loss Spectroscopy)
EFTEM	Microscopie électronique en transmission filtrée en énergie (Energy Filtered TEM)
EJM	Épitaxie par Jets Moléculaires
FFT	Transformée de Fourier rapide (Fast Fourier Transform)
FIB	Focused Ion Beam
GaAs	Arséniure de gallium
HAADF	Champ sombre annulaire à grand angle (High Angle Annular DF)
HR	Haute Résolution
IFFT	Transformée de Fourier rapide inverse (Inverse FFT)
IS	Ion Slicer
mc	monocouche
MEB	Microscope (ou Microscopie) Électronique à Balayage
MET	Microscope (ou Microscopie) Électronique en Transmission
MIR	Moyen infrarouge (Mid-Infrared)
NIR	Proche infrarouge (Near-Infrared)

OPO	Oscillateur Paramétrique Optique
PF	Fluorescence paramétrique (Parametric Fluorescence)
PIPS	Precise Ion Polishing System
PPLN	Niobate de lithium périodiquement retourné (Periodically-Poled Lithium Niobate)
rms	moyenne quadratique (root mean square)
RIE	Gravure ionique réactive (Reactice-Ion Etching)
SFG	Génération de fréquence somme (Sum Frequency Generation)
SHG	Génération de second harmonique (Second Harmonic Generation)
SRE	Super Réseau Équivalent
SROPO	Oscillateur paramétrique optique simplement résonnant (Singly-Resonant OPO)
STEM	Microscope (ou Microscopie) électronique en transmission à balayage
TE	Transverse Électrique
TM	Transverse Magnétique

Annexe B

Fiches de croissances

Nous reportons ci-dessous les fiches de croissance des structures ART235 (dégénérescence de l'accord de phase à $\lambda_p = 1.06 \mu\text{m}$) et ART237 (dégénérescence de l'accord de phase à $\lambda_p = 1.03 \mu\text{m}$). Notons, en particulier, la croissance des alliages ternaires $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ par la technique de croissance d'alliages digitaux, consistant à la répétition de quelques monocouches (mc) d'AlAs et de GaAs (source : Xavier Marcadet, III-V lab).

Nom de la croissance : ART235					
Couche	Matériau et épaisseur intermédiaire				Répétition et épaisseur totale
Protection	GaAs	GaAs	300Å(106 mc)	30 nm	30 nm
Couche confinante	Al _{0.7} Ga _{0.3} As	GaAs	8.5Å(3 mc)	2.83 nm	X353
		AlAs	19.8Å(7 mc)		998.99 nm
Cœur guidant	Al _{0.98} Ga _{0.02} As	AlAs	122.5Å(43.2 mc)	37.5 nm	37.5 nm
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
	GaAs	GaAs	2550Å(963.5 mc)	273 nm	X4 1170.04 nm
	Al _{0.98} Ga _{0.02} As	AlAs	122.5Å(43.2 mc)	37.5 nm	
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
Couche confinante	Al _{0.7} Ga _{0.3} As	GaAs	8.5Å(3 mc)	2.83 nm	X353
		AlAs	19.8Å(7 mc)		998.99 nm
Couche tampon	Al _{0.92} Ga _{0.08} As	GaAs	5.6Å(2 mc)	7.08 nm	X142
		AlAs	65.2Å(23 mc)		1005.36 nm
Amorce	GaAs	GaAs	3000Å(1058.8 mc)	300 nm	300nm
Substrat	GaAs SI 3" 635μm				Wafers : KM516-018XT (1) KM516-019XT (2) KM518-013XT (3)

Nom de la croissance : ART237					
Couche	Matériau et épaisseur intermédiaire				Répétition et épaisseur totale
Protection	GaAs	GaAs	300Å(106 mc)	30 nm	30 nm
Couche confinante	Al _{0.7} Ga _{0.3} As	GaAs	8.5Å(3 mc)	2.83 nm	X353
		AlAs	19.8Å(7 mc)		998.99 nm
Cœur guidant	Al _{0.98} Ga _{0.02} As	AlAs	122.5Å(43.2 mc)	37.5 nm	37.5 nm
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
	GaAs	GaAs	2550Å(900 mc)	255 nm	X4 1170.04 nm
	Al _{0.98} Ga _{0.02} As	AlAs	122.5Å(43.2 mc)	37.5 nm	
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
		AlAs	122.5Å(43.2 mc)		
		GaAs	3.8Å(1.33 mc)		
	AlAs	122.5Å(43.2 mc)			
Couche confinante	Al _{0.7} Ga _{0.3} As	GaAs	8.5Å(3 mc)	2.83 nm	X353
		AlAs	19.8Å(7 mc)		998.99 nm
Couche tampon	Al _{0.92} Ga _{0.08} As	GaAs	5.6Å(2 mc)	7.08 nm	X142
		AlAs	65.2Å(23 mc)		1005.36 nm
Amorce	GaAs	GaAs	3000Å(1058.8 mc)	300 nm	300nm
Substrat	GaAs SI 3" 635μm				Wafers : KM516-018XT (1) KM516-019XT (2) KM518-013XT (3)

Annexe C

Les lentilles magnétiques dans un microscope électronique

Les lentilles magnétiques utilisées dans un microscope électronique sont constituées de deux parties : d’une part un cœur cylindrique, appelé “pièce polaire”, fabriqué à partir d’un matériau magnétique mou (comme le fer mou par exemple) et percé d’un trou que l’on appelle “bore” ; d’autre part une bobine en fil de cuivre qui entoure la pièce polaire (cf. figure C.1).

La plupart des lentilles sont constituées de deux pièces polaires séparées par une certaine distance appelée “gap”. C’est le rapport bore-sur-gap qui établit le pouvoir focalisant de la lentille. Le passage d’un courant dans la bobine crée, au niveau du bore, le champ magnétique responsable de la trajectoire des électrons. Notons qu’un système de refroidissement limite l’échauffement des bobines.

Tout comme en optique, les lentilles magnétiques sont caractérisées par une distance focale, un plan objet, un plan image et un plan focal (objet et image). Le plan objet contient l’objet d’étude et est séparé de la lentille par une distance u . Le plan image contient l’image à travers la lentille, et se trouve à une distance v de celle-ci. Le plan focal image est celui qui contient un point vers lequel convergent tous les rayons d’un faisceau collimaté avant la lentille. Il se trouve à la distance focale, f , de la lentille.

Les règles d’optique géométrique restent valables, et l’on a :

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{u} + \frac{1}{v} \tag{C.1}$$

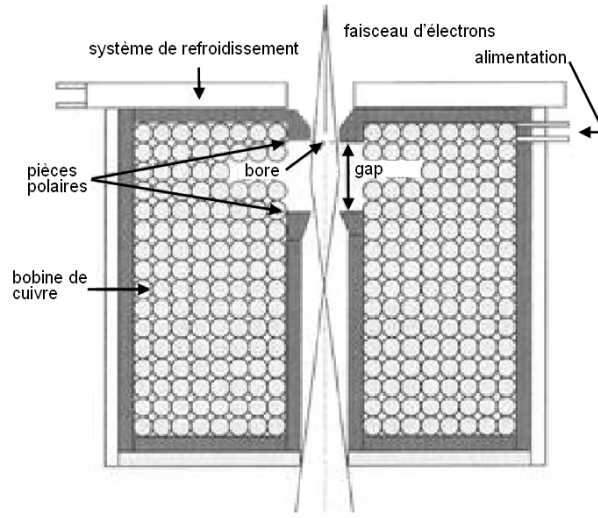


FIGURE C.1 – Représentation schématique d'une lentille magnétique

Notons que pour une lentille magnétique la distance focale est reliée à la valeur du champ magnétique par la relation suivante :

$$\frac{1}{f} = \frac{e^2}{4mv^2} \int_{L1}^{L2} B^2(z) dz \quad (C.2)$$

où e est la charge de l'électron, m sa masse et v sa vitesse, z est la direction de l'axe optique et $L1$ et $L2$ la position des pièces polaires. Sachant que la valeur du champ magnétique est proportionnel au courant dans les bobines, on constate que la distance focale des lentilles magnétiques diminue quand le courant augmente.

Enfin le grandissement G est défini par le rapport v/u .

Annexe D

Rappels sur la fonction de Green

La recherche, par Lacey et Payne, d'une expression analytique du champ électrique se propageant dans un guide d'ondes dont les interfaces sont rugueuses est décrite en profondeur dans leur article intitulé "Radiation loss from planar waveguides with random wall imperfections" [111]. Une fois cette expression trouvée, ils fournissent une expression analytique du coefficient de pertes de propagation α_d . Le point de départ consiste à résoudre l'équation différentielle 4.2 donnée en section 4.1.1 :

$$\nabla^2 E_y(x, z) + k_0^2 n_2^2 E_y(x, z) = k_0^2 (n_2^2 - n_1^2) H[d + f(z) - |x|] E_{y_0}(x, z) \quad (\text{D.1})$$

Afin de résoudre cette équation, Lacey et Payne utilise la fonction de Green. Pour ceux qui ne sont pas familier avec cette fonction, nous en rappelons dans cette annexe l'intérêt et la définition.

Une manière commode de résoudre une équation différentielle de la forme

$$\mathcal{D}\varphi(x) = j(x) \quad (\text{D.2})$$

où \mathcal{D} est un opérateur différentiel quelconque et $j(x)$ est la fonction source de la fonction $\varphi(x)$, est d'utiliser la fonction de Green $G(x)$ définie par

$$\mathcal{D}G(x) = \delta(x)$$

Si la fonction de Green est connue, alors la solution de l'équation D.2 s'écrit sous la forme du produit de convolution

$$\varphi(x) = (G * j)(x) = \int G(x - y)j(y)dy$$

En effet, l'opérateur différentiel agissant seulement sur la variable x , on peut permuter l'intégrale et la dérivée, et en utilisant la définition de la fonction de Green on obtient

$$\begin{aligned}\mathcal{D}\varphi(x) &= \mathcal{D} \left(\int G(x-y)j(y)dy \right) \\ &= \int \mathcal{D} [G(x-y)] j(y)dy \\ &= \int \delta(x-y)j(y)dy \\ &= j(x)\end{aligned}$$

Bibliographie

- [1] M. YAMADA, N. NADA, M. SAITOH et K. WATANABE, « First-order quasi-phase matched LiNbO₃ waveguide periodically poled by applying an external field for efficient blue second-harmonic generation », *Applied Physics Letters*, vol. 62, p. 435, 1993.
- [2] M. RAVARO, *Nonlinear GaAs/AlOx waveguides for parametric down-conversion*. Thèse doctorat, Université Paris Diderot - Paris 7, 2008.
- [3] J. P. van der ZIEL, « Phase-matched harmonic generation in a laminar structure with wave propagation in the plane of the layers », *Applied Physics Letters*, vol. 26, p. 60, 1975.
- [4] J. M. DALLESASSE, J. N. HOLONYAK, A. R. SUGG, T. A. RICHARD et N. ELZEIN, « Hydrolyzation oxidation of Al_xGa_{1-x}As-AlAs-GaAs quantum well heterostructures and superlattices », *Applied Physics Letters*, vol. 57, p. 2844, 1990.
- [5] A. R. SUGG, J. N. HOLONYAK, J. E. BAKER, F. A. KISH et J. M. DALLESASSE, « Native oxide stabilization of AlAs-GaAs heterostructures », *Applied Physics Letters*, vol. 58, p. 1199, 1991.
- [6] A. FIORE, V. BERGER, E. ROSENCHER, N. LAURENT, S. THEILMANN, N. VODJANI et J. NAGLE, « Huge birefringence in selectively oxidized GaAs/AlAs optical waveguides », *Applied Physics Letters*, vol. 68, p. 1320, 1996.
- [7] A. FIORE, V. BERGER, E. ROSENCHER, P. BRAVETTI, N. LAURENT et J. NAGLE, « Phase-matched mid-infrared difference frequency generation in GaAs-based waveguides », *Applied Physics Letters*, vol. 71, p. 3622, 1997.
- [8] A. DE ROSSI, V. BERGER, M. CALLIGARO, G. LEO, V. ORTIZ et X. MARCADET, « Parametric fluorescence in oxidized aluminum gallium arsenide waveguides », *Applied Physics Letters*, vol. 79, p. 3758, 2001.

- [9] M. RAVARO, M. LE DÛ, J. P. LIKFORMAN, S. DUCCI, V. BERGER, G. LEO et X. MARCADET, « Estimation of parametric gain in GaAs/AlOx waveguides by fluorescence and second harmonic generation measurements », *Applied Physics Letters*, vol. 91, p. 191110, 2007.
- [10] A. FIORE, S. JANZ, L. DELOBEL, P. van der MEER, P. BRAVETTI, V. BERGER, E. ROSENCHER et J. NAGLE, « Second-harmonic generation at $\lambda=1.6 \mu\text{m}$ in AlGaAs/Al₂O₃ waveguides using birefringence phase matching », *Applied Physics Letters*, vol. 72, p. 2942, 1998.
- [11] L. CHANVILLARD, P. ASCHIÉRI, P. BALDI, D. B. OSTROWSKY, M. de MICHELI, L. HUANG et D. J. BAMFORD, « Soft proton exchange on periodically poled LiNbO₃ : A simple waveguide fabrication process for highly efficient nonlinear interactions », *Applied Physics Letters*, vol. 76, p. 1089, 2000.
- [12] S. VENUGOPAL RAO, K. MOUTZOURIS, M. EBRAHIMZADEH, A. DE ROSSI, G. GINTZ, M. CALLIGARO, V. ORTIZ et V. BERGER, « Measurements of optical loss in GaAs/Al₂O₃ nonlinear waveguides in the infrared using femtosecond scattering technique », *Optics Communications*, vol. 213, p. 223, 2002.
- [13] D. A. KLEINMAN, « Nonlinear dielectric polarization in optical media », *Physical Review*, vol. 126, p. 1977, 1962.
- [14] J. A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING et P. S. PERSHAN, « Interactions between light waves in a nonlinear dielectric », *Physical Review*, vol. 127, p. 1918, 1962.
- [15] A. HOPF et G. STEGEMAN, *Applied Classical Electrodynamics (vol. 2 : Nonlinear Optics)*. Wiley Interscience, New-York, 1985.
- [16] R. SUTHERLAND, *Handbook of Non Linear Optics*. Marcel Dekker, New York, 1996.
- [17] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics*. Wiley, New York, 1984.
- [18] W. H. LOISELL, A. YARIV et A. E. SIEGMAN, « Quantum fluctuations and noise in parametric processes. I. », *Physical Review*, vol. 124, p. 1646, 1961.
- [19] A. YARIV, *Quantum Electronics*. Wiley, New-York, 1989.
- [20] R. L. BYER et S. E. HARRIS, « Power and bandwidth of spontaneous parametric emission », *Physical Review*, vol. 168, p. 1064, 1968.

- [21] P. BALDI, P. ASCHIERI, S. NOUH, M. DE MICHELI, D. OSTROWSKY, D. DELACOURT et M. PAPUCHON, « Modeling and experimental observation of parametric fluorescence in periodically poled lithium niobate waveguides », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 31, p. 997, 1995.
- [22] T. TAMIR, *Integrated Optics*. Springer-Verlag, Berlin, 1979.
- [23] D. MARCUSE, *Light Transmission Optics*. Van Nostrand Reinhold, New York, 1982.
- [24] P. YEH, *Optical waves in layered media*. Wiley, New-York, 1988.
- [25] M. A. AFROMOWITZ, « Refractive index of $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ », *Solid State Communications*, vol. 15, p. 59, 1974.
- [26] J. A. GIORDMAINE, « Mixing of light beams in crystals », *Physical Review Letters*, vol. 8, p. 19, 1962.
- [27] B. OSTER et H. FOUCKHARDT, « M-waveguide structures for direct phase matching in AlGaAs », *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 73, p. 535, 2001.
- [28] E. LIM, M. FEJER et R. BYER, « Second-harmonic generation of green light in periodically poled planar lithium niobate waveguide », *Electronics Letters*, vol. 25, p. 174, 1989.
- [29] Y. SHUTO, T. WARTANABE, S. TOMARU, I. YOKOHAMA, M. HIKITA et M. AMANO, « Quasi-phase matched second harmonic generation in diazo-dye-substituted polymer channel waveguides », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 33, p. 349, 1997.
- [30] L. GORDON, G. WOODS, R. ECKARDT, R. ROUTE, R. FEIGELSON, M. FEJER et R. BYER, « Diffusion-bonded stacked GaAs for quasiphasematched second-harmonic generation of a carbon dioxide laser », *Electronics Letters*, vol. 29, p. 1942, 1993.
- [31] S. J. B. YOO, R. BHAT, C. CANEAU et M. A. KOZA, « Quasi-phase-matched second-harmonic generation in AlGaAs waveguides with periodic domain inversion achieved by wafer-bonding », *Applied physics letters*, vol. 66, p. 3410, 1995.
- [32] L. A. EYRES, P. J. TOURREAU, T. J. PINGUET, C. B. EBERT, J. S. HARRIS, M. M. FEJER, L. BECOUARN, B. GERARD et E. LALLIER, « All-epitaxial fabrication of thick, orientation-patterned GaAs films for nonlinear optical frequency conversion », *Applied Physics Letters*, vol. 79, p. 904, 2001.

- [33] M. BORN et E. WOLF, *Principles of optics*. 1980.
- [34] A. FIORE, V. BERGER, E. ROSENCHER, P. BRAVETTI et J. NAGLE, « Phase matching using an isotropic nonlinear optical material », *Nature*, vol. 391, p. 463, 1998.
- [35] P. BRAVETTI, A. FIORE, V. BERGER, E. ROSENCHER, J. NAGLE et O. GAUTHIER-LAFAYE, « 5.2-5.6 μm source tunable by frequency conversion in a GaAs-based waveguide », *Optics Letters*, vol. 23, p. 331, 1998.
- [36] K. MOUTZOURIS, S. RAO, M. EBRAHIMZADEH, A. DE ROSSI, V. BERGER, M. CALLIGARO et V. ORTIZ, « Efficient second-harmonic generation in birefringently phase-matched GaAs/ Al_2O_3 waveguides », *Optics Letters*, vol. 26, p. 1785, 2001.
- [37] E. GUILLOTTEL, M. RAVARO, F. GHIGLIENO, C. LANGLOIS, C. RICOLLEAU, S. DUCCI, I. FAVERO et G. LEO, « Parametric amplification in GaAs/ AlOx waveguide », *Applied Physics Letters*, vol. 94, p. 171110, 2009.
- [38] K. KINTAKA, M. FUJIMURA, T. SUHARA et H. NISHIHARA, « High-efficiency LiNbO_3 waveguide second-harmonic generation devices with ferroelectric-domain-inverted gratings fabriated by applying voltage », *Journal of Lightwave Technology*, vol. 14, p. 462, 1996.
- [39] J. B. KHURGIN, M. W. PRUESSNER, T. H. STIEVATER et W. S. RABINOVICH, « Suspended AlGaAs waveguides for tunable difference frequency generation in mid-infrared », *Optics Letters*, vol. 33, p. 2904, 2008.
- [40] S.-H. YANG, M. L. COOPER, P. R. BANDARU et S. MOOKHERJEA, « Giant birefringence in multi-slotted silicon nanophotonic waveguides », *Optics Express*, vol. 16, p. 8306, 2008.
- [41] F. SFIGAKIS, P. PADDON, V. PACRADOUNI, M. ADAMCYK, C. NICOLL, A. R. COWAN, T. TIEDJE et J. F. YOUNG, « Near-infrared refractive index of thick, laterally oxidized AlGaAs cladding layers », *Journal of Lightwave Technology*, vol. 18, p. 199, 2000.
- [42] O. DURAND, F. WYCKZISK, J. OLIVIER, M. MAGIS, P. GALTIER, A. D. ROSSI, M. CALLIGARO, V. ORTIZ, V. BERGER, G. LEO et G. ASSANTO, « Contraction of aluminum oxide thin layers in optical heterostructures », *Applied Physics Letters*, vol. 83, p. 2554, 2003.

- [43] M. OHASHI, T. KONDO, R. ITO, S. FUKATSU, Y. SHIRAKI, K. KUMATA et S. S. KANO, « Determination of quadratic nonlinear optical coefficient of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ system by the method of reflected second harmonics », *Journal of Applied Physics*, vol. 74, p. 596, 1993.
- [44] J. H. KIM, D. H. LIM, K. S. KIM, G. M. YANG, K. Y. LIM et H. J. LEE, « Lateral wet oxidation of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs depending on its structures », *Applied Physics Letters*, vol. 69, p. 3357, 1996.
- [45] R. S. BURTON et T. E. SCHLESINGER, « Wet thermal oxidation of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ compounds », *Journal of Applied Physics*, vol. 76, p. 5503, 1994.
- [46] K. D. CHOQUETTE, K. M. GEIB, C. I. H. ASHBY, R. D. TWESTEN, O. BLUM, H. Q. HOU, D. M. FOLLSTAEDT, B. E. HAMMONS, D. MATHES et R. HULL, « Advances in selective wet oxidation of AlGaAs alloys », *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 3, p. 916, 1997.
- [47] A. DE ROSSI, V. BERGER, G. LEO et G. ASSANTO, « Form birefringence phase matching in multilayer semiconductor waveguides : tuning and tolerances », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 41, p. 1293, 2005.
- [48] K. J. KNOPP, R. P. MIRIN, D. H. CHRISTENSEN, K. A. BERTNESS, A. ROSHKO et R. A. SYNOWICKI, « Optical constants of $(\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02})_x\text{O}_y$ native oxides », *Applied Physics Letters*, vol. 73, p. 3512, 1998.
- [49] D. C. HALL, H. WU, L. KOU, Y. LUO, R. J. EPSTEIN, O. BLUM et H. HOU, « Refractive index and hygroscopic stability of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ native oxides », *Applied Physics Letters*, vol. 75, p. 1110, 1999.
- [50] S. M. WANG, T. G. ANDERSSON, W. Q. CHEN, U. SÖDERVALL et J. THORSSON, « Growth and characterization of digital and compositionally graded AlGaAs/GaAs non-rectangular quantum wells », *Journal of Crystal Growth*, vol. 135, p. 455, 1994.
- [51] W. GEISSELBRECHT, U. PFEIFFER, A. THRÄNHARDT, U. KLÜTZ, A. C. GOSARD et G. H. DÖHLER, « An optimized digital alloy growth technique for accurate band gap engineering », *Journal of Crystal Growth*, vol. 201, p. 163, 1999.
- [52] U. KLEMRADT, M. FUNKE, M. FROMM, B. LENGELER, J. PEISL et A. FÖRSTER, « Growth-induced interface roughness of GaAs/AlAs-layers studied by X-ray scattering under grazing angles », *Physica B : Condensed Matter*, vol. 221, p. 27, 1996.

- [53] H. SAKAKI, T. NODA, K. HIRAKAWA, M. TANAKA et T. MATSUSUE, « Interface roughness scattering in GaAs/AlAs quantum wells », *Applied Physics Letters*, vol. 51, p. 1934, 1987.
- [54] T. UNUMA, M. YOSHITA, T. NODA, H. SAKAKI et H. AKIYAMA, « Intersubband absorption linewidth in GaAs quantum wells due to scattering by interface roughness, phonons, alloy disorder, and impurities », *Journal of Applied Physics*, vol. 93, p. 1586, 2003.
- [55] T. ROCH, A. ANDREWS, G. FASCHING, A. BENZ, W. SCHRENK, K. UNTERRAINER et G. STRASSER, « High-quality MBE growth of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -based THz quantum cascade lasers », *Central European Journal of Physics*, vol. 5, p. 244, 2007.
- [56] A. LEULIET, A. VASANELLI, A. WADE, G. FEDOROV, D. SMIRNOV, G. BASTARD et C. SIRTORI, « Electron scattering spectroscopy by a high magnetic field in quantum cascade lasers », *Physical Review B*, vol. 73, p. 085311, 2006.
- [57] W. T. TSANG, « Self-terminating thermal oxidation of AlAs epilayers grown on GaAs by molecular beam epitaxy », *Applied Physics Letters*, vol. 33, p. 426, 1978.
- [58] C. J. FROSCH et L. DERICK, « Surface protection and selective masking during diffusion in silicon », *Journal of the Electrochemical Society*, vol. 104, p. 547, 1957.
- [59] G. YANG, M. MACDOUGAL et P. DAPKUS, « Ultralow threshold current vertical-cavity surface-emitting lasers obtained with selective oxidation », *Electronics Letters*, vol. 31, p. 886, 1995.
- [60] K. LEAR, K. CHOQUETTE, J. R.P. SCHNEIDER, S. KILCOYNE et K. GEIB, « Selectively oxidised vertical cavity surface emitting lasers with 50 % power conversion efficiency », *Electronics Letters*, vol. 31, p. 208, 1995.
- [61] E. I. CHEN, J. N. HOLONYAK et S. A. MARANOWSKI, « $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ metal-oxide semiconductor field effect transistors formed by lateral water vapor oxidation of AlAs », *Applied Physics Letters*, vol. 66, p. 2688, 1995.
- [62] K. D. CHOQUETTE, K. L. LEAR, J. R. P. SCHNEIDER et K. M. GEIB, « Cavity characteristics of selectively oxidized vertical-cavity lasers », *Applied Physics Letters*, vol. 66, p. 3413, 1995.

- [63] M. J. RIES, E. I. CHEN et J. N. HOLONYAK, « Photopumped laser operation of a planar disorder- and native-oxide-defined AlAs/GaAs photonic lattice », *Applied Physics Letters*, vol. 68, p. 2035, 1996.
- [64] O. BLUM, K. LEAR, H. HOU et M. WARREN, « Buried refractive microlenses formed by selective oxidation of AlGaAs », *Electronics Letters*, vol. 32, p. 1406, 1996.
- [65] K. D. CHOQUETTE, K. L. LEAR, R. P. SCHNEIDER, K. M. GEIB, J. J. FIGIEL et R. HULL, « Fabrication and performance of selectively oxidized vertical-cavity lasers », *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 7, p. 1237, 1995.
- [66] I. SUAREZ, M. CONDÉ, G. ALMUNEAU, L. JALABERT, P. DUBREUIL, J.-B. DOUCET, L. BOUSCAYROL et C. FONTAINE, « Study and fabrication of buried oxide layers in GaAs/AlAs structures for confinement engineering in photonic devices », *SPIE Semiconductors Lasers and Dynamics*, vol. 6997, p. 699723, 2008.
- [67] R. D. TWESTEN, D. M. FOLLSTAEDT, K. D. CHOQUETTE et J. R. P. SCHNEIDER, « Microstructure of laterally oxidized $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers in vertical-cavity lasers », *Applied Physics Letters*, vol. 69, p. 19, 1996.
- [68] F. A. KISH, S. A. MARANOWSKI, G. E. HOFER, J. N. HOLONYAK, S. J. CARRACCI, J. M. DALLESASSE et K. C. HSIEH, « Dependence on doping type (p/n) of the water vapor oxidation of high-gap $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ », *Applied Physics Letters*, vol. 60, p. 3165, 1992.
- [69] A. C. ALONZO, X. C. CHENG et T. C. MCGILL, « Strain in wet thermally oxidized square and circular mesas », *Journal of Applied Physics*, vol. 87, p. 4594, 2000.
- [70] C. I. H. ASHBY, J. P. SULLIVAN, P. P. NEWCOMER, N. A. MISSERT, H. Q. HOU, B. E. HAMMONS, M. J. HAFICH et A. G. BACA, « Wet oxidation of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$: Temporal evolution of composition and microstructure and the implications for metal-insulator-semiconductor applications », *Applied Physics Letters*, vol. 70, p. 2443, 1997.
- [71] C. I. H. ASHBY, J. P. SULLIVAN, K. D. CHOQUETTE, K. M. GEIB et H. Q. HOU, « Wet oxidation of AlGaAs : the role of hydrogen », *Journal of Applied Physics*, vol. 82, p. 3134, 1997.
- [72] T. LANGENFELDER, S. SCHRODER et H. GROTHE, « Lateral oxidation of buried $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ layers in a wet ambient », *Journal of Applied Physics*, vol. 82, p. 3548, 1997.

- [73] M. DALLESASSE, N. EL-ZEIN, J. N. HOLONYAK, K. C. HSIEH, R. D. BURNHAM et R. D. DUPUIS, « Environmental degradation of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum-well heterostructures », *Journal of Applied Physics*, vol. 68, p. 2235, 1990.
- [74] T. TAKAMORI, K. TAKEMASA et T. KAMIJOH, « Interface structure of selectively oxidized AlAs/GaAs », *Applied Physics Letters*, vol. 69, p. 659, 1996.
- [75] R. Y. LI, Z. G. WANG, B. XU, P. JIN, X. GUO et M. CHEN, « Time dependence of wet oxidized AlGaAs/GaAs distributed Bragg reflectors », *Journal of Vacuum Science & Technology B*, vol. 23, p. 2137, 2005.
- [76] K. M. GEIB, K. D. CHOQUETTE, H. Q. HOU et B. E. HAMMONS, « Fabrication issues of oxide-confined VCSEL's », in *Vertical-cavity surface emitting lasers* (K. D. CHOQUETTE et D. DEPPE, édés), vol. 3003, p. 69, 1997.
- [77] K. D. CHOQUETTE, K. M. GEIB, H. C. CHUI, H. Q. HOU et R. HULL, « Selective oxidation of buried AlGaAs for fabrication of vertical-cavity lasers », in *Materials Research Society Proceeding*, vol. 421, p. 53, 1996.
- [78] K. CHOQUETTE, R. S. JR., K. LEAR et K. GEIB, « Low threshold voltage vertical-cavity lasers fabricated by selective oxidation », *Electronics Letters*, vol. 30, p. 2043, 1994.
- [79] S. GUHA, F. AGAHI, B. PEZESHKI, J. A. KASH, D. W. KISKER et N. A. BOJARCZUK, « Microstructure of AlGaAs-oxide heterolayers formed by wet oxidation », *Applied Physics Letters*, vol. 68, p. 906, 1996.
- [80] G. W. PICKRELL, J. H. EPPLE, K. L. CHANG, K. C. HSIEH et K. Y. CHENG, « Improvement of wet-oxidized $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ($x \simeq 1$) through the use of AlAs/GaAs digital alloys », *Applied Physics Letters*, vol. 76, p. 2544, 2000.
- [81] G. ALMUNEAU, R. BOSSUYT, P. COLLIÈRE, L. BOUSCAYROL, M. CONDÉ, I. SUAREZ, V. BARDINAL et C. FONTAINE, « Real-time in situ monitoring of wet thermal oxidation for precise confinement in VCSELs », *Semiconductor Science and Technology*, vol. 23, p. 105021, 2008.
- [82] M. CONDÉ, *Composants optoélectroniques à microcavité verticale sur GaAs : Technologies avancées pour de nouvelles fonctions*. Thèse doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2008.
- [83] M. KNOLL et E. RUSKA, « Das elektronenmikroskop », *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, vol. 78, p. 318, 1932.

- [84] D. B. WILLIAMS et C. B. CARTER, *Transmission Electron Microscopy*. Springer, 1996.
- [85] D. ALLOYEAU, *Etude quantitative par microscopie électronique des nanoparticules de CoPt : croissance et effets de taille sur les phénomènes ordre / désordre*. Thèse doctorat, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6, 2007.
- [86] D. SHINDO et T. OIKAWA, *Analytical Electron Microscopy for material science*. Springer, 2002.
- [87] F. HOUELIER, « Dans l'oeil du microscope électronique à transmission », <http://www.cemes.fr/microscopie/>.
- [88] J. HILLIER et R. F. BAKER, « Microanalysis by means of electrons », *Journal of Applied Physics*, vol. 15, p. 663, 1944.
- [89] D. J. BARBER, « Radiation damage in ion-milled specimens : characteristics, effects and methods of damage limitation », *Ultramicroscopy*, vol. 52, p. 101, 1993.
- [90] J. P. MCCAFFREY, M. W. PHANEUF et L. D. MADSEN, « Surface damage formation during ion-beam thinning of samples for transmission electron microscopy », *Ultramicroscopy*, vol. 87, p. 97, 2001.
- [91] B. SUN, Y. WANG, J. WEN, H. YANG, M. SUI, J. WANG et E. MA, « Artifacts induced in metallic glasses during TEM sample preparation », *Scripta Materialia*, vol. 53, p. 805, 2005.
- [92] J. AYACHE, L. BEAUNIER, J. POTTU-BOUMENDIL, G. EHRET et D. LAUB, *Guide de préparation des échantillons pour la Microscopie Électronique en Transmission - Tome 1, Méthodologie*. Presse Universitaire Saint-Étienne, 2007.
- [93] J. BRAVMAN, R. ANDERSON et M. McDONALD, « Specimen preparation for Transmission Electron Microscopy of materials », vol. 115, Materials Research Society, 1988.
- [94] R. ANDERSON, « Specimen preparation for Transmission Electron Microscopy of materials II », vol. 199, Materials Research Society, 1990.
- [95] R. ANDERSON, B. TRACY et J. BRAVMAN, « Specimen preparation for Transmission Electron Microscopy of materials III », vol. 254, Materials Research Society, 1992.

- [96] J. AYACHE, L. BEAUNIER, J. POTTU-BOUMENDIL, G. EHRET et D. LAUB, *Guide de préparation des échantillons pour la Microscopie Électronique en Transmission - Tome 2, Techniques*. Presse Universitaire Saint-Étienne, 2007.
- [97] A. YASUHARA, « Development of Ion Slicer (thin-film specimen preapration equipment) », *JEOL News*, vol. 40, p. 46, 2005.
- [98] T. OHNISHI, H. KOIKE, T. ISHITANI, S. TOMIMATSU, K. UMEMURA et T. KAMINO, « A new focused ion beam microsampling technique for TEM observation of site-specific areas », p. 449, Proceedings ISTFA, 1999.
- [99] H. ROBERTS et B. OTTERLOO, « FIB-TEM sample preparation by in-situ lift out technique », in *EFUG 2001*, 2001.
- [100] L. GIANNUZZI, B. KEMPSHALL, S. SCHWARZ, J. LOMNESS, B. PRENITZER et F. A. STEVIE, *Introduction to Focused Ion Beam, instrumentation, theory, technique and practice*, chap. FIB lift-out specimen preparation techniques, p. 201. Springer, 2005.
- [101] F. HOFER, P. WARBICHLER et W. GROGGER, « Imaging of nanometer-sized precipitates in solids by electron spectroscopic imaging », *Ultramicroscopy*, vol. 59, p. 15, 1995.
- [102] T. MALIS, S. C. CHENG et R. F. EGERTON, « EELS log-ratio technique for specimen-thickness measurement in the TEM », *Journal of Electron Microscopy Technique*, vol. 8, p. 193, 1988.
- [103] T. SCHUHRKE, M. MÄNDL, J. ZWECK et H. HOFFMANN, « Investigation of surface amorphization of silicon wafers during ion-milling », *Ultramicroscopy*, vol. 41, p. 429, 1992.
- [104] Y. YABUUCHI, S. TAMETOU, T. OKANO, S. INAZATO, S. SADAYAMA, Y. YAMAMOTO, K. IWASAKI et Y. SUGIYAMA, « A study of the damage on FIB-prepared TEM samples of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ », *Journal of Electron Microscopy (Tokyo)*, vol. 53, p. 471, 2004.
- [105] Z. HUANG, « Combining Ar ion milling with FIB lift-out techniques to prepare high quality site-specific TEM samples », *Journal of microscopy*, vol. 215, p. 219, 2004.
- [106] J. SCOTT, F. DOCHERTY, M. MACKENZIE, W. SMITH, B. MILLER, C. COLLINS et A. CRAVEN, « Sample preparation for nanoanalytical electron microscopy using

- the FIB lift-out method and low energy ion milling », in *Emag-Nano 2005 : Imaging, Analysis and Fabrication on the Nanoscale*, 2006.
- [107] F. SORBELLO, G. HUGHES, P. LEJCEK, P. HEARD et P. FLEWITT, « Preparation of location-specific thin foils from Fe-3 % Si bi- and tri-crystals for examination in a FEG-STEM », *Ultramicroscopy*, vol. 109, p. 147, 2009.
- [108] S. M. GOODNICK, D. K. FERRY, C. W. WILMSEN, Z. LILIENTAL, D. FATHY et O. L. KRIVANEK, « Surface roughness at the Si(100)-SiO₂ interface », *Physical Review B*, vol. 32, p. 8171, 1985.
- [109] M. J. HÛTCH, M. G. WALLS et J. P. CHEVALIER, « Measurement of roughness and diffuseness of interfaces », *Ultramicroscopy*, vol. 83, p. 217, 2000.
- [110] C. D. THURMOND, G. P. SCHWARTZ, G. W. KAMMLOTT et B. SCHWARTZ, « GaAs oxidation and the Ga-As-O equilibrium phase diagram », *Journal of the Electrochemical Society*, vol. 127, p. 1366, 1980.
- [111] J. P. R. LACEY et F. P. PAYNE, « Radiation loss from planar waveguides with random wall imperfections », *IEEE Proceedings : Optoelectronics*, vol. 137, p. 282, 1990.
- [112] F. P. PAYNE et J. P. R. LACEY, « A theoretical analysis of scattering loss from planar optical waveguides », *Optical and Quantum Electronics*, vol. 26, p. 977, 1994.
- [113] K. K. LEE, D. R. LIM, H.-C. LUAN, A. AGARWAL, J. FORESI et L. C. KIMERLING, « Effect of size and roughness on light transmission in a Si/SiO₂ waveguide : Experiments and model », *Applied Physics Letters*, vol. 77, p. 1617, 2000.
- [114] K. K. LEE, D. R. LIM, L. C. KIMERLING, J. SHIN et F. CERRINA, « Fabrication of ultralow-loss Si/SiO₂ waveguides by roughness reduction », *Optics Letters*, vol. 26, p. 1888, 2001.
- [115] F. GRILLOT, L. VIVIEN, S. LAVAL, D. PASCAL et E. CASSAN, « Size influence on the propagation loss induced by sidewall roughness in ultrasmall SOI waveguides », *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 16, p. 1661, 2004.
- [116] S. VENUGOPAL RAO, K. MOUTZOURIS, M. EBRAHIMZADEH, A. DE ROSSI, G. GINTZ, M. CALLIGARO, V. ORTIZ et V. BERGER, « Influence of scattering and two-photon absorption on the optical loss in GaAs-Al₂O₃ nonlinear waveguides measured using femtosecond pulses », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 39, p. 478, 2003.

- [117] D. MARCUSE, « Mode conversion caused by surface imperfections of a dielectric slab waveguide », *Bell System Technical Journal*, vol. 48, p. 3187, 1969.
- [118] A. W. SNYDER et J. D. LOVE, *Optical waveguide theory*, chap. 21. Chapman and Hall, 1983.
- [119] D. G. HALL, « Scattering of optical guided waves by waveguide surface roughness : a three-dimensional treatment », *Optics Letters*, vol. 6, p. 601, 1981.
- [120] F. LADOUCEUR, J. D. LOVE et T. J. SENDEN, « Effect of side wall roughness in buried channel waveguides », *IEEE Proceedings : Optoelectronics*, vol. 141, p. 242, 1994.
- [121] F. M. IZRAILEV, N. M. MAKAROV et M. RENDÓN, « Gradient and amplitude scattering in surface-corrugated waveguides », *Physical Review B*, vol. 72, p. 041403, 2005.
- [122] D. T. F. MARPLE, « Refractive index of GaAs », *Journal of Applied Physics*, vol. 35, p. 1241, 1964.
- [123] M. L. BORTZ, M. A. ARBORE et M. M. FEJER, « Quasi-phase-matched optical parametric amplification and oscillation in periodically poled LiNbO₃ waveguides », *Optics Letters*, vol. 20, p. 49, 1995.
- [124] G. BAVA, G. BAVA, I. MONTROSSET, W. SOHLER et H. A. S. H. SUCHE, « Numerical modeling of Ti :LiNbO₃ integrated optical parametric oscillators », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 23, p. 42, 1987.
- [125] Y. OKAMURA, S. YOSHINAKA et S. YAMAMOTO, « Measuring mode propagation losses of integrated optical waveguides : a simple method », *Applied Optics*, vol. 22, p. 3892, 1983.
- [126] I. P. KAMINOW et L. W. STULZ, « Loss in cleaved Ti-diffused LiNbO₃ waveguides », *Applied Physics Letters*, vol. 33, p. 62, 1978.
- [127] R. REGENER et W. SOHLER, « Loss in low-finesse Ti :LiNbO₃ optical waveguide resonators », *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. 36, p. 143, 1985.
- [128] A. DE ROSSI, V. ORTIZ, M. CALLIGARO, L. LANCO, S. DUCCI, V. BERGER et I. SAGNES, « Measuring propagation loss in a multimode semiconductor waveguide », *Journal of Applied Physics*, vol. 97, p. 073105, 2005.

-
- [129] J. BJORKHOLM, A. ASHKIN et R. SMITH, « Improvement of optical parametric oscillators by nonresonant pump reflection », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 6, p. 797, 1970.
 - [130] E. D. PALIK, *Handbook of optical constants of solids, Vol. I*. Academic Press, San Diego, 1998.
 - [131] C. RICHY, K. I. PETSAS, E. GIACOBINO et C. FABRE, « Observation of bistability and delayed bifurcation in a triply resonant optical parametric oscillator », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 12, p. 456, 1995.
 - [132] K. KNOPP, « Rigorous diffraction theory for transmission phase gratings with deep rectangular grooves », *Journal of the Optical Society of America*, vol. 68, p. 1206, 1978.
 - [133] E. SILBERSTEIN, P. LALANNE, J.-P. HUGONIN et Q. CAO, « Use of grating theories in integrated optics », *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 18, p. 2865, 2001.

Liste des publications

Articles

1. M. Ravaro, E. Guillotel, M. Le Dû, C. Manquest, X. Marcadet, S. Ducci, V. Berger and G. Leo, "Nonlinear measurement of mid-IR absorption in AlOx waveguides", *Applied Physics Letters*, vol. 92, 151111, 2008.
2. E. Guillotel, M. Ravaro, F. Ghiglieno, C. Langlois, C. Ricolleau, S. Ducci, I. Favero and G. Leo, "Parametric amplification in GaAs/AlOx waveguide", *Applied Physics Letters*, vol. 94, 171110, 2009.
3. E. Guillotel, C. Langlois, M. Savanier, F. Ghiglieno, S. Ducci, I. Favero and G. Leo, "Propagation losses in GaAs/AlOx nonlinear waveguide and their impact on parametric oscillation threshold", *Proceeding SPIE*, vol. 7728, 772808, 2010.
4. E. Guillotel, C. Langlois, F. Ghiglieno, G. Leo and C. Ricolleau, "TEM characterization of oxidized AlGaAs/AlAs nonlinear optical waveguides", *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 43, 385302, 2010.

Conférences

1. E. Guillotel, M. Le Dû, M. Ravaro, I. Sagnes, J-P. Likforman, S. Ducci, G. Leo et V. Berger, "Towards an ultimate control of laterally wet oxydized Al(Ga)As layers for a reliable use in photonics devices", Journées Scientifiques de l'ONERA "Sources optiques paramétriques pour l'infrarouge", Clamart, 5-6 février 2007.
2. E. Guillotel, M. Le Dû, M. Ravaro, C. Langlois, C. Ricolleau, I. Sagnes, J-P. Likforman, S. Ducci, V. Berger et G. Leo, "Vers un contrôle ultime de l'oxydation latérale humide de couches d'Al(Ga)As pour son utilisation dans des dispositifs photoniques", 26^{ème} Journées Nationales de l'Optique Guidée (JNOG 2007), Grenoble, 2-5 juillet 2007.
3. M. Ravaro, M. Le Dû, E. Guillotel, J-P. Likforman, S. Ducci, V. Berger et G. Leo, "Guides d'ondes GaAs/AlOx pour la génération paramétrique : performances et perspectives", 10^{ème} Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ 10), Grenoble, 2-5 juillet 2007.
4. E. Guillotel, C. Langlois, Ch. Ricolleau, S. Ducci, L. Lanco, X. Lafosse, I. Sagnes, V. Berger et G. Leo, "Optical and material elements for a guided-wave GaAs/AlOx

- integrated OPO”, Franco-US workshop on Nanophotonics, Paris, 8 juillet 2008.
5. E. Guillotel, M. Savanier, M. Ravano, F. Ghiglieno, S. Ducci, I. Favero et G. Leo, “Amplification paramétrique dans un guide d’onde GaAs/AlOx : vers un oscillateur paramétrique cw intégré”, Ecole thématique interdisciplinaire sur la couleur des matériaux, Roussillon, 23-27 mars 2009.
 6. E. Guillotel, C. Langlois, S. Asahina, B. Domengès, G. Leo, T. Oikawa et C. Ricolleau, “Comparaison de techniques d’amincissement ionique de guides d’onde GaAs/AlOx localisés”, 11^{ème} Colloque de la Société Française des Microscopies, Paris, 22-26 juin 2009.
 7. E. Guillotel, C. Langlois, G. Leo et Ch. Ricolleau, “Caractérisation par MET des effets de l’oxydation latérale humide de guides d’onde GaAs/AlGaAs”, 11^{ème} Colloque de la Société Française des Microscopies, Paris, 22-26 juin 2009.
 8. E. Guillotel, M. Savanier, F. Ghiglieno, S. Ducci, I. Favero, G. Leo, “Propagation losses in GaAs/AlOx nonlinear waveguide and their impact on parametric oscillation threshold”, SPIE Photonics Europe, Brussels, 12-16 April 2010.

Chapitre de livre

1. E. Guillotel, M. Ravano, F. Ghiglieno, M. Savanier, I. Favero, S. Ducci, and G. Leo (2010). GaAs/AlOx Nonlinear Waveguides for Infrared Tunable Generation, Advances in Optical and Photonic Devices, Ki Young Kim (Ed.)